



**HAL**  
open science

# Capteurs quantiques à centres NV : vers de nouvelles modalités d'imagerie

Maxime Rollo

► **To cite this version:**

Maxime Rollo. Capteurs quantiques à centres NV : vers de nouvelles modalités d'imagerie. Physique Quantique [quant-ph]. Université de Montpellier, 2022. Français. NNT : 2022UMONS057 . tel-04062607

**HAL Id: tel-04062607**

**<https://theses.hal.science/tel-04062607>**

Submitted on 7 Apr 2023

**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 POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

En Physique

École doctorale : Information, Structure, Systèmes

Unité de recherche UMR 5221

Capteurs quantiques à centres NV :  
vers de nouvelles modalités d'imagerie

Présentée par Maxime ROLLO

Le 28 novembre 2022

Sous la direction de Isabelle ROBERT-PHILIP

Devant le jury composé de

Mme Valia VOLIOTIS, Professeur des universités, INSP - Sorbonne Université, Paris

M. Thierry DEBUSSCHERT, Ingénieur de recherche, Thales RT - Palaiseau

M. Xavier MARIE, Professeur, LPCNO - INSA, Toulouse

M. Gabriel HÉTET, Maître de conférences, LPENS - ENS, Paris

Mme Aurore FINCO, Chargée de recherche CNRS, L2C - Université de Montpellier

M. Vincent JACQUES, Directeur de recherche CNRS, L2C - Université de Montpellier

Mme Isabelle ROBERT-PHILIP, Directrice de recherche CNRS, L2C - Université de Montpellier

Rapporteuse

Rapporteur

Président du jury

Examineur

Invitée

Invité

Directrice de thèse



UNIVERSITÉ  
DE MONTPELLIER



À toi, fabuleux lecteur d'exception,



# REMERCIEMENTS

---

Pour vous lecteurs, les remerciements sont la première étape d'un long voyage à travers mon travail de thèse mais pour moi, cela signifie la fin du périple et le point final de ce manuscrit. Au premier abord, on pourrait croire que cette étape est anecdotique mais elle est, en fait, bien plus importante qu'il n'y paraît puisqu'elle me permet de remercier toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à mon évolution durant ces trois années et de souligner le rôle important qu'elles ont eu. Cette étape reste donc d'une importance capitale à ne surtout pas prendre à la légère et c'est pour cette même raison que je vais mettre tout mon cœur à l'ouvrage pour rendre hommage à ces personnes qui ont joué un rôle important dans cette évolution. C'est donc avec une joie immense et indescriptible mais aussi en tremblant de tous mes membres de peur d'omettre quelqu'un dans cette liste que je commence l'histoire de ma thèse par ces remerciements sincères avec deux traits qui, à mon avis, me caractérisent parfaitement : une patience à toute épreuve et un sérieux en toute circonstance (sic!).

Mes premiers mots sont évidemment destinés à ma directrice de thèse Isabelle Robert-Philip qui a décidé de parier sur moi pour faire avancer le projet thermométrie. Ce projet en plus d'être intéressant m'a permis de découvrir un domaine de recherche aussi vaste que passionnant et de développer mes connaissances au fil des discussions. J'ai beaucoup apprécié la patience dont tu as fait preuve ainsi que la grande disponibilité tant pour les aspects scientifiques que pour les aspects administratifs qui m'ont facilité la vie durant ces trois années. Bien entendu je tiens à te remercier pour tes précieux conseils lors de la rédaction/relecture du manuscrit ainsi que ton aide lors de la préparation des présentations orales mais surtout la soutenance de thèse. En dehors de cela, j'ai tout autant apprécié les discussions sur des sujets divers et variés au travers de ton nombre impressionnant d'anecdotes. Je tiens à mettre en évidence que ce fut un réel plaisir de travailler avec toi dans cet environnement amical pendant ces trois années si bien que je n'ai pas vu le temps passer.

Je vais aussi, en quelques lignes, remercier Vincent Jacques qui a également contribué de manière importante à mon évolution durant ces trois années. Bien que tu ne fusses pas officiellement mon encadrant de thèse, tu as toujours été disponible pour discuter des résultats expérimentaux ou de solutions pour les différents problèmes rencontrés au fil de ces trois années. C'est d'ailleurs ta façon toujours positive de voir les choses qui m'a le plus marqué quels que soient les résultats obtenus. Bien sûr, je tiens aussi à te remercier pour les longues heures que tu as prises de ton temps pour peaufiner les moindres détails de mes présentations orales. Tes conseils à ce niveau ont sans aucun doute grandement contribué à l'amélioration de la qualité de mes supports directement visible en

comparant ceux préparés lors de ma première année avec celui de la soutenance de thèse. Dans tous les cas, je ne retiens que du positif de cette thèse et je me délecterai de mon café matinal dans ma tasse de la marque VJ encore pendant un bon bout de temps !

Il est maintenant temps de remercier une héroïne de l'ombre sans qui mon périple n'aurait pas été aussi aisé et sympa. Je parle évidemment d'Aurore Finco. D'abord en tant que post-doc dans le même bureau puis par la suite en tant que membre permanente de l'équipe vers la fin de ma thèse, il m'est aujourd'hui impossible de lister tout ce que tu as fait pour moi pendant ces trois années. J'ai adoré passer toutes ces heures dans la salle de manip' pour faire avancer la relaxométrie, l'électrométrie ou même certains projets de magnétométrie. Je me souviendrais bien sûr de la fleur en électrométrie qui finalement ressemble à une cacahouète après une journée complète non-stop de mesures. Je te remercie sincèrement pour tout ce que tu m'as appris que cela soit dans le domaine de la physique ou même pour certains outils (python, latex, ..) mais aussi ta patience, ton aide précieuse et ton temps au quotidien notamment lorsque j'étais dans l'impasse mais aussi pour tous les entraînements aux présentations orales, lors de la rédaction de thèse ou encore toutes les choses que j'oublie certainement. Outre la physique, je voudrais souligner ta motivation à vouloir me concocter un gâteau à mon goût et de ce fait, je me souviendrais des gâteaux en forme de spin pour le jour de la soutenance mais la palme revient à ce fameux gâteau aux litchis qui était absolument délicieux. Je vais conclure en disant que j'ai grandement apprécié d'une part de travailler avec toi et, d'autre part, de participer aux soirées jeux de société ou autres événements que tu as organisés et dont je garde d'excellents souvenirs.

Il me reste encore des compagnons importants à mettre en valeur et c'est avec plaisir que je vais le faire. Je ne vais certainement pas oublier et je vais même commencer par le pitre Florentin Fabre qui est sans conteste la personne qui m'a permis de réaliser cette thèse en me mettant en relation avec cette équipe de recherche. Bien sûr, tu es la personne avec qui j'ai passé le plus de temps mais j'ai la flemme de faire tout un paragraphe alors je vais être bref et je sais que tu ne m'en voudras pas. Ton aide m'a été très précieuse tout au long de ces trois ans, notamment pour les figures 3D ou encore pour ton sens de l'orientation incroyable. Outre cela, tu as été un acolyte parfait, toujours avec une ribambelle de projets pour faire avancer la 'Team S2QTroll'. Bien que tous ne se soient pas réalisés en raison d'un manque de réalisme, ce fut un réel plaisir de partager ces trois ans avec toi. Par ailleurs, il est important pour moi d'adresser quelques remerciements à Alrik Durand, qui, malgré le fait qu'il ne soit pas très très bavard et plutôt avare en mots m'a transmis un très grand nombre de connaissances que ce soit dans les domaines de l'optique, l'électronique, la physique ou bien d'autres encore mais m'a surtout consacré beaucoup de temps et donné énormément de conseils tout au long de ma thèse notamment lorsque je me retrouvais bloqué. Je remercie aussi Rana Tanos de m'avoir rapidement intégré au projet thermométrie en me transmettant ce qu'il fallait savoir pour avancer et Angela Haykal d'avoir éclipsé la peur d'utiliser le magnétomètre NV. Je souhaiterais aussi

remercier Adrien Rousseau pour avoir accepté de partager avec moi ses vastes connaissances au travers de discussions toujours passionnantes et surtout de m'avoir permis d'entrevoir son nombre indescriptible de qualités que je ne peux pas détailler ici au risque d'écrire une page de plus mais que je vais lister en bas de page<sup>1</sup>. Je souhaite aussi dédier quelques mots à Pierre Valvin notamment pour l'organisation de soirées astronomiques aussi merveilleuses que fantastiques mais aussi pour... Désolé, mon FAIRORDI s'est éteint et n'a pas gardé en mémoire la fin de la phrase. Enfin, merci Yoann Baron.

En plus des personnages principaux de mon histoire, il y a évidemment un grand nombre de personnes qui se doivent d'être remerciées à leur juste valeur pour leurs contributions. En commençant par les autres membres permanents de l'équipe, tels que Bernard Gil, Guillaume Cassabois ou encore Anaïs Dréau puis en continuant avec les membres non permanents que j'ai eu le plaisir de rencontrer, tels que Christine Elias, Pawan Kumar ou encore plus récemment Zhao Mu mais aussi les nouvelles recrues doctorantes, telles que Elias Sfeir, Tristan Clua-Provost, Félix Cache et Juliette Plo à qui je souhaite d'apprécier autant que moi ce voyage de trois ans. J'aimerais également ajouter un mot pour Roméo Beignon, qui malgré la courte durée de son stage de M1 m'a permis de faire un pas de géant dans la partie thermométrie.

Pour compléter cette liste, je souhaite adresser quelques remerciements aux différentes personnes en dehors du laboratoire et de l'équipe qui ont participé à mes travaux. À commencer par Marcelo González, Gediminas Seniutinas, Felipe Favaro et Mathieu Munsch de l'entreprise *QNAMI* que j'ai côtoyés du début à la fin dans le cadre de la thermométrie. En ce qui concerne le laboratoire *Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N)*, Thibaut Devolder pour l'aide lors des expériences de relaxométrie ainsi que Luc Le Gratiet, Rémy Braive et Isabelle Sagnes pour la fabrication des échantillons à base de nanofils semi-conducteurs.

Bien entendu, je transmets aussi mes remerciements à Valia Voliotis de l'*Institut des NanoSciences de Paris (INSP)*, Thierry Debuisschert de *Thales Research & Technology*, Xavier Marie du *Laboratoire de Physique et Chimie des Nano-Objets (LPCNO)* et Gabriel Hétet du *Laboratoire de Physique de L'École Normale Supérieure (LPENS)* pour avoir accepté de composer mon jury de thèse. En plus de cela, je remercie Xavier Marie pour avoir présidé la soutenance de thèse, puis surtout Valia Voliotis et Thierry Debuisschert pour avoir accepté de prendre le temps d'être mes rapporteurs et de décortiquer mon manuscrit de thèse.

Je voudrais aussi parfaire cette liste en remerciant d'abord Pierre Lefebvre, directeur du laboratoire Charles Coulomb pour m'avoir accueilli dans son établissement mais aussi tous les membres de ce dernier avec lesquels j'ai pu interagir durant ces trois années. Plus particulièrement, je remercie Béatrice Tomberli pour toute son aide précieuse et son efficacité dans les procédures

---

1. gentil



administratives, Stéphanie Martegoutes pour sa bonne humeur et son aide dans les commandes auprès des fournisseurs, Christophe Roblin et Christophe Consejo pour m'avoir consacré du temps à la micro-soudeuse, Sébastien Nanot et Christophe Coillot pour avoir partagé leurs expériences avec moi, Steeve Cronenberger et Frédéric Teppe pour avoir participé à mon comité de suivi de thèse, Jean-Christophe Art pour la gestion des missions hors du laboratoire, Christian L'henoret et Thomas Cohen pour leurs pièces mécaniques, Laurent Rigal pour les petits services ou encore Yves Treguier qui met toujours un point d'honneur à ce que nous travaillions en toute sécurité.

Je souhaite remercier la région *Occitanie* et l'*ANR THESEUS* pour avoir financé ces travaux de recherches et bien sûr l'école doctorale *Information, Structures et Systèmes (I2S)*.

Pour finir cette liste, j'ai à cœur de remercier toutes les personnes qui m'ont soutenu que ce soit ma famille ou mes amis.





# TABLE DES MATIÈRES

---

<b>Introduction</b>	1
<b>1 Le centre NV : Un capteur quantique de référence</b>	5
<b>1.1 Le centre NV : un atome artificiel dans le diamant</b>	7
1.1.1 Propriétés optiques du centre NV	7
1.1.2 Propriétés électroniques du centre NV	9
1.1.3 Détection optique du spectre de résonance magnétique	12
<b>1.2 Hamiltonien de spin</b>	12
1.2.1 Effet de la température	13
1.2.2 Effet d'un champ magnétique statique	15
1.2.3 Effet d'un champ électrique statique	17
1.2.4 Effet de l'interaction avec le spin nucléaire de l'azote	19
<b>1.3 Dynamique de relaxation du spin électronique</b>	21
1.3.1 Temps de relaxation $T_1$	21
1.3.2 Temps de cohérence $T_2^*$ et $T_2$	23
<b>1.4 Protocoles de mesure et sensibilité</b>	28
1.4.1 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode continu	28
1.4.2 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode impulsionnel	31
<b>1.5 Le magnétomètre NV à balayage</b>	32
1.5.1 Principe de fonctionnement	33
1.5.2 Modes d'imagerie du champ magnétique	35
<b>Conclusion</b>	36
<b>2 Le centre NV : Un thermomètre à l'échelle nanométrique</b>	39
<b>2.1 Pointe en diamant optimisée pour l'imagerie thermique à balayage</b>	43
2.1.1 L'architecture de l'imageur de température	43
2.1.2 Sensibilité en température de la pointe en diamant optimisée	46
2.1.3 Résolution spatiale de la pointe en diamant optimisée	58
<b>2.2 Nanosources de chaleur formées par des structures thermoplasmoniques</b>	58
2.2.1 Propriétés des structures thermoplasmoniques	59
2.2.2 Configurations d'excitation optique des structures thermoplasmoniques	63
2.2.3 Analyse des structures thermoplasmoniques de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$	65
2.2.4 Origine de l'effet de chauffage du capteur de température	72

<b>2.3</b>	<b>Nanosources de chaleur formées par des constriction dans une ligne d'or</b>	<b>74</b>
2.3.1	Propriétés thermiques des constriction dans des lignes de courant en or	74
2.3.2	Protocole de mesure simultané de la température et du champ magnétique	76
2.3.3	Cartographie du champ magnétique et de la température avec un centre NV unique	82
2.3.4	Stratégies possibles pour s'affranchir de l'effet de la composante perpendiculaire du champ magnétique	87
<b>2.4</b>	<b>Nanosources de chaleur formées par des lignes de courant de dimensions nanométriques</b>	<b>89</b>
2.4.1	Nanosources de chaleur formées par des lignes métalliques de dimension nanométrique	89
2.4.2	Nanosources de chaleur formées par des lignes semi-conductrices de dimension nanométrique	91
	<b>Conclusion</b>	<b>97</b>
<b>3</b>	<b>Le centre NV : Détecteur de bruit magnétique</b>	<b>99</b>
<b>3.1</b>	<b>Dynamique de relaxation du centre NV</b>	<b>101</b>
3.1.1	Effet du bruit magnétique sur le temps de relaxation $T_1$	102
3.1.2	Effet du bruit magnétique sur la photophysique du centre NV	106
<b>3.2</b>	<b>Une source de bruit magnétique calibrée pour étudier la photophysique du centre NV</b>	<b>109</b>
3.2.1	Configuration expérimentale	109
3.2.2	Procédure expérimentale de mesure du temps de relaxation $T_1$	111
3.2.3	Calibration du temps de relaxation $T_1$ avec la source de bruit magnétique	112
<b>3.3</b>	<b>Validation expérimentale du modèle à trois niveaux</b>	<b>118</b>
3.3.1	Évolution des propriétés photophysiques du centre NV	118
3.3.2	Estimation de la sensibilité de cette technique	120
3.3.3	Comparaison avec la mesure à un $\tau$ unique	121
<b>3.4</b>	<b>Application de cette méthode sur une couche antiferromagnétique synthétique</b>	<b>124</b>
3.4.1	Détection des parois de domaine	124
3.4.2	Étude quantitative des parois de domaine	125
3.4.3	Étude de la variation du contraste des parois de domaine	126
3.4.4	Origine du bruit magnétique dans le matériau antiferromagnétique synthétique	128
	<b>Conclusion</b>	<b>129</b>
<b>4</b>	<b>Le centre NV : Un capteur de champ électrique à l'échelle nanométrique</b>	<b>131</b>
<b>4.1</b>	<b>Détermination du protocole de mesure du champ électrique</b>	<b>133</b>
4.1.1	Hamiltonien sous un champ électrique	134
4.1.2	Comportement de l'effet Stark sous un champ magnétique perpendiculaire	137
4.1.3	Mise en place des conditions expérimentales optimales	140
<b>4.2</b>	<b>Mesure du champ électrique avec le centre NV</b>	<b>144</b>
4.2.1	Description de l'échantillon	145

4.2.2	Mesure d'un champ électrique statique	146
4.2.3	Mesure du champ électrique en régime oscillant	150
	<b>Conclusion</b>	157
	<b>Conclusion et perspectives</b>	159
A	Le microscope NV à balayage	163
B	Caractérisation de la distance de vol	167
C	Méthode de propagation inverse	169
D	Calibration des angles du centre NV	171
E	Perspectives de développement de l'électrométrie	173
	<b>Bibliographie</b>	179



# INTRODUCTION

---

La mécanique quantique est une théorie mathématique et physique née voilà plus d'un siècle. En apportant une description des phénomènes fondamentaux à l'œuvre dans les rayonnements et dans les systèmes physiques aux échelles atomique et sub-atomique, elle a permis de résoudre de nombreux problèmes que la physique classique échouait alors à expliquer, tel que le rayonnement du corps noir ou la structure de l'atome. Elle a de fait conduit à de profonds bouleversements dans notre perception et compréhension du monde microscopique mais s'est aussi révélée très féconde en termes d'applications. On considère aujourd'hui deux phases en termes d'innovations technologiques, que l'on appelle *révolutions*. La première révolution a reposé sur le contrôle des objets quantiques (photons, électrons...) dans leur ensemble, et a conduit à toute une série d'avancées et découvertes qui continuent de bouleverser notre quotidien avec, par exemple, l'avènement des transistors, des lasers... Depuis le début des années 1980, une seconde révolution se dessine [1], grâce aux progrès dans le contrôle des objets quantiques individuels et de leurs interactions. Contrairement à la première, la seconde révolution s'appuie sur des systèmes quantiques individuels et tire parti des propriétés contre-intuitives de la mécanique quantique, telles que la superposition d'états ou l'intrication, pour concevoir de nouvelles technologies de rupture. Ces technologies, que l'on dénomme *technologies quantiques*, adressent quatre domaines d'applications : la métrologie et les capteurs quantiques [2], la cryptographie et les communications quantiques [3, 4], la simulation de problèmes complexes ou non résolus [5] et le calcul quantique [6]. Les travaux développés dans le cadre de cette thèse relèvent du champ des capteurs quantiques.

Les capteurs quantiques tirent profit de l'extrême sensibilité des objets quantiques à leur environnement pour réaliser des capteurs aux performances surpassant celles de leurs équivalents classiques. À ce jour, plusieurs principales classes d'objets quantiques sont employées dans ce contexte. Nous en décrivons brièvement les principales.

L'une d'entre elles repose sur des atomes ou des ions et trouve dès à présent des applications dans les horloges atomiques, les accéléromètres, les gyromètres, les gravimètres ou les magnétomètres ultra-résolvants. En utilisant des vapeurs d'atomes, on peut aujourd'hui mesurer des champs magnétiques avec des sensibilités de l'ordre de  $100 \text{ aT}/\sqrt{\text{Hz}}$  [7] qui peuvent, en théorie, atteindre  $10 \text{ aT}/\sqrt{\text{Hz}}$ , en prolongeant les temps de relaxation et de cohérence jusqu'à la minute [8]. Les techniques d'interférométrie atomique à partir de nuages d'atomes froids, permettent quant à elles de réaliser des gyromètres [9] ou des gravimètres [10]. Récemment, les gravimètres à atomes froids ont atteint une précision de l'ordre de  $10^{-9}g$  [11] (avec  $g$  l'accélération de la pesanteur à la surface de la Terre).



Ces interféromètres à ondes de matière sont aujourd'hui commercialisés et employés par exemple en géophysique via la mesure de l'accélération de la pesanteur et de ses variations qui renseigne sur les variations de répartition des masses au sein de la Terre (associée par exemple à la présence d'eau ou d'hydrocarbures). Les systèmes à ions piégés sont quant à eux employés pour sonder les champs électriques et les forces avec des sensibilités prédites de  $500 \text{ nV m}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  et  $1 \text{ yN} / \sqrt{\text{Hz}}$  [12, 13] respectivement. Ils peuvent aussi sonder les champs magnétiques avec une sensibilité atteignant  $4,6 \text{ pT} / \sqrt{\text{Hz}}$  [14] et sont étudiés comme capteur de bruit électrique sur les surfaces [15]. De la même manière que les ions piégés, les atomes de Rydberg se couplent fortement aux champs électriques, ce qui en fait de remarquables détecteurs de champ électrique avec une sensibilité de quelques  $\mu\text{V cm}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  [16, 17].

Une deuxième classe de capteurs quantiques recourt à des SQUIDs (pour *Superconducting QUantum Interference Device*). Ce capteur est l'un des outils les plus performants pour mesurer le champ magnétique avec une sensibilité pouvant atteindre  $10 \text{ aT} / \sqrt{\text{Hz}}$  [18]. Ce champ est détecté par l'effet Aharonov-Bohm et lu par deux jonctions Josephson en parallèle dans une boucle superconductrice. La récente miniaturisation des dispositifs SQUID a permis de les incorporer à l'extrémité d'une pointe en quartz de microscopie à balayage, pour faire de l'imagerie fortement résolue spatialement. Cette technique a été nommée SOT pour *SQUID On Tip* en anglais. Elle permet de réaliser des cartographies du champ magnétique avec des sensibilités magnétiques de l'ordre du  $\text{nT} / \sqrt{\text{Hz}}$  avec une résolution spatiale de l'ordre de  $50 \text{ nm}$  directement limitée par le diamètre de la boucle superconductrice [19-22]. Outre la mesure du champ magnétique, une variante pour mesurer la température a aussi été développée (tSOT) avec une résolution spatiale similaire mais cette fois-ci une sensibilité thermique record pouvant atteindre quelques dizaines de  $\mu\text{K} / \sqrt{\text{Hz}}$  [23, 24].

Une dernière classe d'objets quantiques repose sur des spins associés à des défauts atomiques dans des matériaux semi-conducteurs (diamant, carbure de silicium, nitrure de bore hexagonal...). Le défaut phare dans ce contexte est le centre azote-lacune (ou centre NV pour *Nitrogen-Vacancy* en anglais) dans le diamant. Depuis sa découverte en 1965 par résonance paramagnétique électronique (EPR) [25] mais surtout son isolation à l'échelle unique en 1997 par microscopie optique confocale [26], le centre NV est apparu comme un défaut de premier choix pour réaliser un capteur quantique. Ce défaut possède un spin électronique sensible aux champs magnétiques [27] et électriques [28], à la température [29], aux contraintes [30] mais aussi à des phénomènes fluctuants comme des sources de bruit magnétique [31] et électrique [32] dans son environnement. De plus, l'extension atomique de ce défaut permet d'atteindre des résolutions spatiales sub- $100 \text{ nm}$ . Ce défaut peut de plus être intégré au bout d'une pointe de microscope à force atomique pour réaliser un capteur NV à balayage. L'application principale de ce défaut est aujourd'hui l'imagerie magnétique. Les magnétomètres NV à balayage offrent des sensibilités de l'ordre du  $\mu\text{T} / \sqrt{\text{Hz}}$  [33] et des résolutions spatiales en dessous de  $100 \text{ nm}$  [34], tout en étant non-perturbatifs, opérant à température ambiante et permettant une

imagerie vectorielle du champ. Ils sont commercialisés depuis 2020 [35] et ont trouvé de vastes champs d'applications, notamment en matière condensée.

Si le spin du centre NV est fortement sensible aux champs magnétiques, il est aussi sensible à d'autres paramètres : la température, le bruit magnétique, le champ électrique notamment. Ceci laisse entrevoir la possibilité de réaliser un imageur polyvalent aux échelles nanométriques. Cette perspective est au cœur de ce travail de thèse portant sur l'extension des modalités d'imagerie des capteurs à centre NV capable de cartographier le champ magnétique mais aussi les variations de température, le bruit magnétique et le champ électrique.

## Plan de la thèse

**Le premier chapitre** se concentre sur le centre NV et ses propriétés. Dans ce chapitre, je vais me pencher sur plusieurs volets. D'abord, je vais présenter les propriétés optiques et électroniques du centre NV et ensuite analyser l'influence de paramètres physiques statiques comme la température, le champ magnétique ou encore le champ électrique sur le spin électronique de ce défaut. Le deuxième volet concerne sa sensibilité à ces grandeurs physiques. Pour cela, je vais introduire la dynamique du centre NV au travers des temps de relaxation et de cohérences et ainsi discuter des sensibilités atteignables pour deux protocoles de mesures (sous excitations continues ou impulsives). Enfin, le dernier volet décrit brièvement le principe du magnétomètre NV à balayage. Je vais alors exposer l'architecture de ce dispositif expérimental qui servira de base pour le développement du microscope NV à balayage multifonction à l'échelle nanométrique.

**Le deuxième chapitre** explore la possibilité d'étendre le dispositif expérimental pour cartographier les variations de température. Pour cela, je vais commencer par présenter une pointe en diamant constituée de plusieurs centres NV et optimisée pour la mesure de la température dans le but de caractériser ses performances. D'abord, je me concentre sur sa sensibilité. Puis, dans la suite du chapitre, je m'attarde sur trois géométries différentes de sources de chaleur de dimension nanométrique afin de déterminer la résolution spatiale.

**Le troisième chapitre** examine le potentiel du microscope NV à balayage pour cartographier les sources de bruit magnétique. Pour cet objectif, je vais introduire un modèle simplifié pour comprendre l'évolution des propriétés photophysiques du centre NV en présence d'un bruit magnétique dans son environnement. Ces prédictions sont ensuite comparées à une étude quantitative de la réponse du centre NV en fonction du bruit magnétique qui a pour finalité d'élaborer une méthode de détection optique de la présence de sources de bruit magnétique. Après cela, je détermine la sensibilité de cette méthode optique que je compare à la technique déjà existante dans la littérature. Enfin,

cette technique de détection tout optique est incorporée dans le microscope NV à balayage pour cartographier le bruit magnétique produit par un matériau antiferromagnétique synthétique.

**Le quatrième chapitre** étudie les conditions expérimentales nécessaires pour étendre les modalités de ce même dispositif vers la cartographie du champ électrique. Dans un premier temps, je détermine l'effet du champ électrique sur le spin électronique du centre NV et mets en évidence les conditions expérimentales nécessaires pour sonder le champ électrique. Puis, dans un second temps, je présente nos premières expériences, en utilisant un condensateur plan de taille micrométrique composé de deux lignes en or comme source de champ électrique.

Le manuscrit se termine par une **conclusion** résumant les principaux résultats tout en proposant des perspectives. Des **annexes** donnent ensuite des détails expérimentaux sur le montage et les procédures de calibration.

# LE CENTRE NV : UN CAPTEUR QUANTIQUE DE RÉFÉRENCE

---

<b>1.1 Le centre NV : un atome artificiel dans le diamant</b>	<b>7</b>
1.1.1 Propriétés optiques du centre NV	7
1.1.2 Propriétés électroniques du centre NV	9
1.1.3 Détection optique du spectre de résonance magnétique	12
<b>1.2 Hamiltonien de spin</b>	<b>12</b>
1.2.1 Effet de la température	13
1.2.2 Effet d'un champ magnétique statique	15
1.2.3 Effet d'un champ électrique statique	17
1.2.4 Effet de l'interaction avec le spin nucléaire de l'azote	19
<b>1.3 Dynamique de relaxation du spin électronique</b>	<b>21</b>
1.3.1 Temps de relaxation $T_1$	21
1.3.2 Temps de cohérence $T_2^*$ et $T_2$	23
<b>1.4 Protocoles de mesure et sensibilité</b>	<b>28</b>
1.4.1 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode continu	28
1.4.2 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode impulsionnel	31
<b>1.5 Le magnétomètre NV à balayage</b>	<b>32</b>
1.5.1 Principe de fonctionnement	33
1.5.2 Modes d'imagerie du champ magnétique	35
<b>Conclusion</b>	<b>36</b>

Les défauts dans les cristaux ont fait l'objet de nombreux travaux depuis les années 1950. L'analyse de leurs propriétés électroniques, optiques ou encore magnétiques, s'est tout d'abord largement appuyée sur des techniques de résonance paramagnétique électronique (EPR). Cette technique de mesure nécessite cependant de recourir à des ensembles de défauts afin de pouvoir les observer. C'est au travers de larges progrès instrumentaux qu'il a été possible d'isoler des défauts cristallins à l'échelle individuelle [36]. Un défaut ponctuel optiquement actif en particulier a fait l'objet d'un nombre conséquent de travaux de recherche depuis son isolation à l'échelle unique en 1997 [26]. Ce défaut est le centre NV du diamant pour *Nitrogen-Vacancy* en anglais et est formé d'une association entre un atome d'azote et une lacune dans la maille cristalline du diamant [37].

Ce défaut peut être vu en première approximation comme un atome artificiel niché dans la maille cristalline du diamant. Il est responsable d'une émission parfaitement stable à température ambiante dans le spectre visible [37]. L'isolation de ce dernier à l'échelle unique a été réalisée pour la première fois en 1997 dans l'équipe de J. Warchtrup à l'*Université de Technologie de Chemnitz* par microscopie optique confocale [26]. En plus de ses propriétés optiques, ses propriétés de spin ont attiré un fort intérêt. Tout d'abord, l'état fondamental du centre NV est un triplet de spin  $S = 1$  [38]. Par ailleurs, le spin électronique du centre NV peut être polarisé optiquement [26] mais aussi manipulé de manière cohérente à l'aide d'une excitation micro-onde [39]. De plus, son spectre de résonance magnétique peut être mesuré optiquement à partir du taux de photoluminescence du centre NV [26]. Enfin, ses temps de cohérences s'avèrent très longs, même à température ambiante [40]. Tout cela procure de nombreux avantages pour utiliser le spin associé à ce défaut pour réaliser un capteur quantique à l'échelle nanométrique.

L'histoire du centre NV en tant que capteur de champ magnétique à l'échelle nanométrique commence avec la proposition en 2005 de B. Chernobrod et G. Berman. Leur idée consiste à ajouter un spin individuel à l'extrémité d'une pointe de microscope à sonde locale [41]. Le couplage du champ magnétique avec ce spin individuel induit une levée de dégénérescence des niveaux d'énergie par effet Zeeman. De ce fait, par l'étude de la résonance magnétique, il est possible de réaliser une mesure quantitative du champ magnétique  $\mathbf{B}$  par le biais de ce spin individuel. De plus, cette résonance magnétique peut être détectée optiquement [42, 43]. Une telle architecture combine ainsi la haute sensibilité d'un spin individuel au champ magnétique, avec une résolution spatiale d'un microscope à force atomique, permettant de réaliser des cartographies quantitatives du champ de fuite avec des résolutions spatiales de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres [41]. C'est suite à de nombreuses études sur le contrôle du spin associé au centre NV du diamant que le principe d'opération d'un microscope magnétique à balayage NV a été proposé par les équipes de M. Lukin à l'*Université d'Harvard* et de J. Warchtrup à l'*Université de Stuttgart* en 2008 [27, 44, 45]. En 2012, le magnétomètre à centre NV à balayage a été mis en place pour la première fois [34, 46] et depuis, cette technique s'est largement développée notamment pour étudier un large panel de matériaux dans la

matière condensée allant de la cartographie de domaines magnétiques dans des matériaux 2D [47–49] à l'imagerie de structures topologiques magnétiques [50], d'ordres antiferromagnétiques [51–57] ou encore l'étude du courant traversant une couche de graphène [58, 59].

Dans ce chapitre, je vais commencer par introduire le capteur quantique d'intérêt, le centre NV dans le diamant ainsi que ses propriétés optiques et électroniques (voir [Partie 1.1](#)). Dans un second temps, je vais me pencher sur l'effet de certaines grandeurs physiques dans son environnement, comme la température, le champ magnétique ou encore le champ électrique, sur les niveaux d'énergie du spin électronique du centre NV afin de comprendre comment mesurer ces grandeurs statiques à l'aide de ce défaut (voir [Partie 1.2](#)). Par la suite, je vais discuter des propriétés dynamiques de relaxation et de cohérence du spin électronique du centre NV (voir [Partie 1.3](#)). Je vais analyser ensuite les sensibilités ultimes de mesure en régime d'excitations laser et micro-onde continues et impulsives (voir [Partie 1.4](#)). Enfin, je vais présenter l'architecture d'un magnétomètre NV à balayage ainsi que certains de ses différents modes d'imagerie (voir [Partie 1.5](#)).

## 1.1 Le centre NV : un atome artificiel dans le diamant

Dans cette première partie, je vais introduire le centre NV, un défaut dans le cristal de diamant dont le spin électronique associé servira de capteur quantique pendant l'intégralité de ce travail de thèse. D'abord, je vais détailler ses propriétés optiques. Ensuite, je vais m'intéresser à ses propriétés électroniques et notamment aux caractéristiques du spin électronique. Enfin, je vais décrire la technique de détection optique de la résonance magnétique du spin électronique.

### 1.1.1 Propriétés optiques du centre NV

Le diamant est un matériau semi-conducteur composé d'atomes de carbone arrangés suivant une structure cubique. Dans cet allotrope du carbone, l'énergie séparant la bande de valence de la bande de conduction notée  $E_{\text{gap}}$  est de 5,49 eV [60], ce qui correspond à une longueur d'onde dans le domaine ultraviolet (voir [Figure 1.1](#) (a)). Autrement dit, dans le domaine du visible, ce matériau est transparent.

Cependant, il est possible de percevoir une couleur dans le domaine du visible pour certains de ces diamants. Ce phénomène provient de la présence de défauts optiquement actifs dont les énergies se situent dans la large bande interdite du diamant [60]. On nomme ces derniers "centres colorés" dans le diamant et dans le cas de cette thèse, on va s'intéresser à un centre coloré en particulier : le centre NV pour *Nitrogen-Vacancy* en anglais. Le centre NV est l'association d'un atome d'azote

en substitution adjacent à une lacune dans la matrice de diamant (voir Figure 1.1 (b)). Ce défaut peut être considéré comme un atome artificiel dans la maille de diamant. En première approximation, il peut être décrit par un système à deux niveaux d'énergie discrets situés dans le gap du diamant et découplés des bandes de valence et de conduction (voir Figure 1.1 (a)). Le centre NV existe sous deux formes : une forme neutre nommée  $NV^0$  mais aussi une forme négativement chargée  $NV^-$ . **Par la suite, on se concentrera exclusivement sur cette seconde forme notée NV par souci de simplification.**

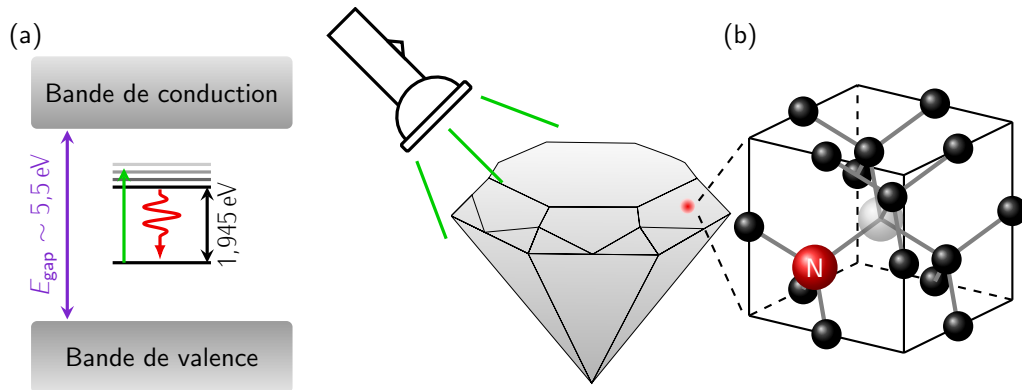


FIGURE 1.1 – (a) Diagramme énergétique représentant la bande de valence et la bande de conduction du diamant séparées par une bande interdite d'énergie  $E_{\text{gap}} \sim 5,5 \text{ eV}$ . Les états électroniques localisés du centre NV dans la bande interdite sont aussi représentés avec une séparation énergétique de  $1,945 \text{ eV}$  entre l'état fondamental et le premier état excité correspondant à une désexcitation dans le rouge. (b) Structure atomique du centre NV dans la maille du diamant. Les atomes de carbone sont représentés en noir tandis que l'atome d'azote est en rouge et la lacune en gris.

La séparation en énergie entre le niveau fondamental et le niveau excité vaut  $1,945 \text{ eV}$  soit  $637 \text{ nm}$  en longueur d'onde (voir Figure 1.2 (a)). Excité par un rayonnement laser vert, le centre NV émet donc un signal de photoluminescence dans le rouge. Cette transition optique est fortement couplée aux phonons de la matrice de diamant ce qui induit un élargissement du spectre d'émission, avec une raie zero-phonon à la longueur d'onde de  $637 \text{ nm}$  [61] (Figure 1.2 (b)). Ce qui est remarquable, c'est que la photoluminescence du centre NV est parfaitement photostable à température ambiante [26]. Autrement dit, si on éclaire le défaut avec un laser vert continu, le taux de photoluminescence est constant et ne subit aucun phénomène de blanchiment ou de clignotement. Le centre NV a été pour la première fois observé sur des ensembles par résonance paramagnétique électronique (EPR) [25] mais c'est en 1997 que l'isolation d'un seul centre NV unique a été réalisée en cartographiant et analysant sa photoluminescence par microscopie optique confocale [26]. Sur la figure 1.2 (c) on retrouve un exemple d'une telle carte de photoluminescence. Chaque point brillant représente un centre NV unique dans un diamant massif. Ces propriétés optiques remarquables ont été utilisées depuis pour réaliser des sources de photons uniques robustes à température ambiante [62] ou encore pour démontrer des protocoles de cryptographie [63, 64] mais aussi dans le domaine de la biologie avec

notamment l'utilisation de nanodiamants contenant des ensembles de centres NV comme marqueurs fluorescents [65–67].

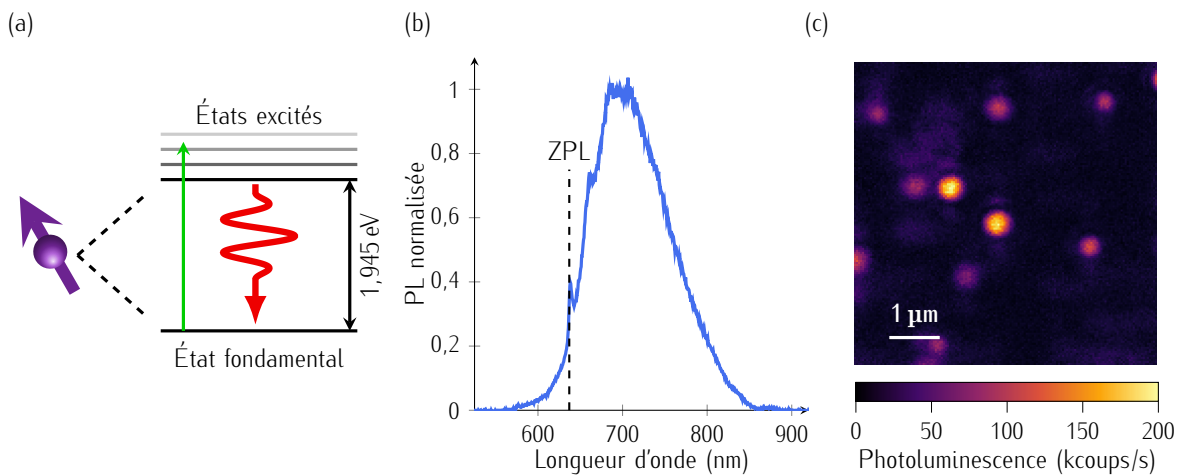


FIGURE 1.2 – (a) Schéma simplifié des états fondamentaux et excités du centre NV découplés des bandes de valence et de conduction du diamant. L'énergie de la transition entre l'état fondamental et le premier état excité est de 1,945 eV soit une émission à la longueur d'onde 637 nm. (b) Spectre d'émission d'un centre NV unique à température ambiante extrait de la référence [68]. (c) Exemple d'une carte de photoluminescence enregistrée par microscopie confocale dans un diamant massif. Chaque point brillant correspond à un centre NV unique.

Ces propriétés optiques ne sont pas le seul atout de ce défaut puisqu'en plus de cela, il possède des propriétés de spin tout aussi intéressantes. On va les discuter par la suite en se concentrant sur l'état fondamental du centre NV.

### 1.1.2 Propriétés électroniques du centre NV

De par le remplacement de deux atomes de carbone par une lacune et un atome d'azote, le centre NV a un excès de cinq électrons. Trois d'entre eux proviennent de l'électron non lié des trois atomes de carbone adjacents à la lacune tandis que les deux autres électrons proviennent des électrons excédentaires de l'atome d'azote. Cette forme composée de cinq électrons est nommée  $NV^0$  mais on peut aussi trouver ce défaut sous sa forme ionisée composée d'un sixième électron  $NV^-$  [69, 70] provenant d'autres impuretés de type donneur dans la matrice (voir Figure 1.3). La capture d'un électron supplémentaire abaisse le niveau d'énergie total [71] et la forme ionisée  $NV^-$  notée NV dans la suite, est une forme stable composée de six électrons confinés au voisinage du défaut [72–74].

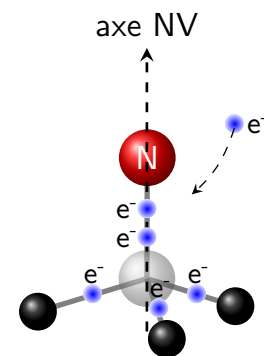


FIGURE 1.3 – Schéma atomique du centre NV. Le centre  $NV^-$  comporte six électrons dont deux non appariés.



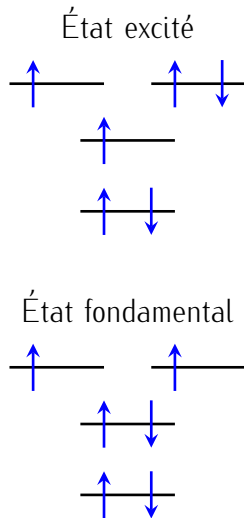


FIGURE 1.4 – Schémas simplifiés du remplissage des orbitales par les électrons.

Dans le niveau fondamental, les deux orbitales de basses énergies, symétriques et non-dégénérées, sont remplies tandis que les deux orbitales dégénérées d'énergie supérieure sont partiellement remplies avec un seul électron (voir Figure 1.4). Dans le premier état excité, un des électrons de l'orbitale d'énergie intermédiaire sur la figure 1.4 est promu vers une des orbitales de plus haute énergie. Il apparaît ainsi que dans ces deux configurations, deux électrons sont non-appariés. Deux états de spin sont alors possibles : un état singulet de nombre quantique  $S = 0$  ou un état triplet de nombre quantique  $S = 1$ . L'état fondamental de plus basse énergie dans le cas présent est le triplet de spin [69, 70].

La structure fine de cet état triplet provient essentiellement de l'interaction spin-spin entre les deux électrons non appariés puisque le couplage spin-orbite est nul au premier ordre par effet de symétrie [69, 70, 75, 76]. Ceci a pour conséquence de lever la dégénérescence entre les états d'énergie  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  avec  $m_s$  le nombre quantique correspondant à la projection de l'état de spin électronique suivant l'axe de quantification du centre NV (axe lacune-azote). Cette levée de dégénérescence est caractérisée par le terme de clivage axial  $D$  qui vaut pour l'état fondamental  $D \approx 2,87$  GHz (voir Figure 1.5 (a)). L'état excité du centre NV est aussi un état triplet  $S = 1$  avec une interaction spin-spin plus faible et un terme de clivage axial  $D_{\text{ex}} \approx 1,42$  GHz [76–78].

La transition optique discutée précédemment se fait entre les états triplets fondamental et excité. Les règles de sélection liées aux transitions dipolaires électriques à température ambiante imposent que cette transition radiative conserve la projection du spin électronique suivant l'axe du défaut soit  $\Delta m_s = 0$ . Une fois que le centre NV est porté dans l'état excité par un laser vert, il peut alors relaxer dans l'état fondamental en émettant un photon optique de fluorescence, en satisfaisant la règle de sélection  $\Delta m_s = 0$  et donc en conservant l'état de spin électronique. Cette relaxation est très rapide avec un temps de vie de l'ordre de 10 ns [79]. Cependant, le centre NV peut aussi relaxer via des transitions non-radiatives. Il peut en effet subir une conversion intersystème (ISC), et se désexciter de façon non radiative à travers un état singulet métastable ayant un temps de vie de l'ordre de 200 ns [80]. Le couplage à cet état métastable dépend de l'état de spin considéré (voir Figure 1.5 (a)). Les transitions non-radiatives qui s'établissent sont indiquées par les flèches en pointillé. Les taux de désexcitation depuis l'état excité vers l'état métastable et depuis l'état métastable vers l'état fondamental dépendent de la projection de spin  $m_s$ . En première approximation, seules les populations de spin  $m_s = \pm 1$  de l'état excité peuvent passer dans l'état métastable et lorsqu'il est dans l'état métastable, le centre NV ne relaxe que vers l'état  $m_s = 0$  de l'état fondamental [80]. Ceci a deux conséquences remarquables.

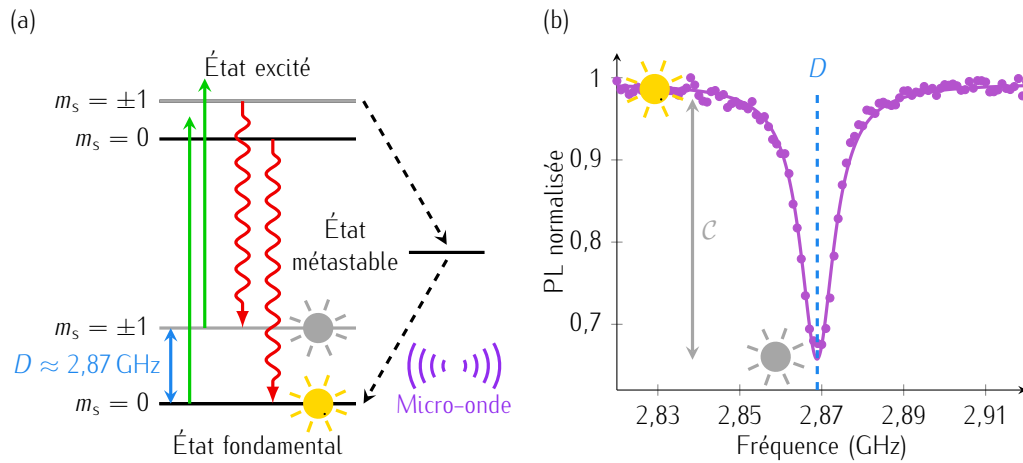


FIGURE 1.5 – (a) Schéma simplifié de la structure fine du centre NV à température ambiante et en l'absence de champ magnétique. Les états fondamental et excité sont des états triplets de spin. Les flèches vertes correspondent aux excitations laser non résonnantes tandis que les flèches rouges indiquent les transitions radiatives liées à la désexcitation du centre NV telles que  $\Delta m_s = 0$ . Les flèches en pointillés noirs correspondent aux transitions non radiatives (transitions *croisements inter-systèmes*) via l'état métastable. (b) Spectre de résonance magnétique du spin électronique d'un centre NV unique en l'absence de champ magnétique externe à température ambiante. L'évolution du signal de la photoluminescence est enregistrée en fonction de la fréquence de la micro-onde d'excitation. La chute de photoluminescence a lieu à la fréquence des transitions entre l'état brillant  $m_s = 0$  et les états sombres  $m_s = \pm 1$ .

À température ambiante et à l'équilibre thermodynamique, l'état du spin électronique est gouverné par une distribution de Boltzmann entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ . Il s'agit d'un état thermique entièrement dépolarisé. Cependant, sous illumination optique, après plusieurs cycles d'excitation, les populations initialement de projection  $m_s = \pm 1$  ont une forte probabilité de relaxer vers l'état fondamental via l'état métastable. Or, cette transition via l'état métastable ne conserve pas l'état de spin et conduit les populations vers l'état de projection  $m_s = 0$  de l'état fondamental. De fait, l'illumination optique perturbe l'équilibre thermodynamique initial, en polarisant le spin dans les états de projection  $m_s = 0$  avec un taux de polarisation d'environ 80% [80, 81]. Outre le fait de permettre une polarisation de l'état de spin par simple pompage optique, l'existence de ce canal de relaxation non radiatif et sélectif en spin impacte le taux de photoluminescence du centre NV en fonction de l'état de projection du spin. Lorsque le spin est dans l'état  $m_s = 0$ , l'unique canal de désexcitation depuis l'état excité vers l'état fondamental est un canal radiatif. En revanche, lorsqu'il est dans l'état  $m_s = \pm 1$ , deux canaux s'offrent à lui : un canal radiatif direct vers l'état fondamental et un canal non-radiatif via l'état métastable. Ainsi, les populations initialement dans l'état  $m_s = \pm 1$  émettent moins de photons de fluorescence que les populations dans l'état  $m_s = 0$ . Le taux de photoluminescence émis par le centre NV dépend donc de son état de spin électronique. On dit

que l'état  $m_s = 0$  est un état brillant tandis que les états  $m_s = \pm 1$  sont des états sombres (voir [Figure 1.5 \(a\)](#)).

Ces deux propriétés du centre NV (taux de photoluminescence dépendant du spin et polarisation du spin par pompage optique), peuvent être mises à profit pour mesurer optiquement le spectre de résonance magnétique [26]. On parle alors de détection optique de la résonance magnétique (ou ODMR pour *Optically Detected Magnetic Resonance* en anglais). Le protocole pour réaliser cette mesure est décrit dans la partie suivante.

### 1.1.3 Détection optique du spectre de résonance magnétique

Pour réaliser la mesure optique du spectre de résonance magnétique, on excite le centre NV avec un laser vert afin de polariser l'état de spin dans l'état  $m_s = 0$  puis on enregistre le taux de photoluminescence émis par le centre NV sous excitation micro-onde à différentes fréquences. Par cette méthode, en faisant varier la fréquence du champ micro-onde, on peut obtenir un spectre de résonance magnétique tel que celui présenté sur la [figure 1.5 \(b\)](#). Lorsque la fréquence de la micro-onde n'est pas accordée sur la fréquence de la transition entre l'état  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ , l'état de spin initialement polarisé dans l'état  $m_s = 0$ , reste dans cet état et le taux de photoluminescence du centre NV est élevé. En revanche, à résonance, une partie des populations bascule vers les états de spin  $m_s = \pm 1$ . Il y a un transfert des populations depuis l'état brillant vers les états sombres, induisant une chute du taux de photoluminescence. Cette chute du signal, à la fréquence micro-onde  $D$  en absence de champ magnétique externe, permet la détection optique de la résonance du spin électronique du centre NV.

Cette technique de mesure peut être mise à profit pour réaliser un capteur de haute sensibilité, fondé sur la dépendance des propriétés de spin du centre NV à diverses grandeurs physiques dans son environnement. Cette dépendance sera développée dans la partie suivante, en analysant le Hamiltonien qui gouverne les propriétés de spin.

## 1.2 Hamiltonien de spin

Dans cette partie, je vais tout d'abord présenter l'influence de la température sur le terme de clivage axial  $D$ . Ensuite, je vais m'intéresser à l'influence d'un champ magnétique statique puis du champ électrique dans son environnement. Pour finir, je vais décrire l'impact de l'interaction du spin nucléaire du centre NV avec son spin électronique.

### 1.2.1 Effet de la température

En absence de champ magnétique ou électrique externe et en négligeant le couplage hyperfin avec les spins nucléaires voisins, le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  décrivant le spin électronique s'écrit [78] :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = D \left[ S_z^2 - \frac{1}{3} S(S+1) \right] + \mathcal{E}(S_x^2 - S_y^2) \quad (1.1)$$

où  $D$  est le terme de clivage axial qui vaut pour l'état fondamental  $D \approx 2,87$  GHz à température ambiante,  $\mathcal{E}$  est le terme de clivage transverse,  $h$  est la constante de Planck et  $S_x$ ,  $S_y$  et  $S_z$  sont les opérateurs de spin  $S = 1$  sans dimension. L'axe  $z$  correspond à l'axe de quantification du centre NV qui est l'axe reliant l'atome d'azote à la lacune [70].

Le terme  $\frac{S(S+1)}{3}$  est une constante qui induit le même décalage sur tous les niveaux d'énergie et qui ne nécessite pas une prise en compte dans le cas où on s'intéresse aux écarts entre les niveaux d'énergie. On ne va alors pas le prendre en considération dans la suite de ce travail de thèse.

Comme expliqué dans la [Partie 1.1](#), le terme de clivage axial  $D$  résulte de l'interaction spin-spin entre les deux électrons non appariés. Il est responsable de la levée de dégénérescence entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ . Ce terme dépend du recouvrement des fonctions d'onde des électrons. Il peut donc varier sous l'effet d'une déformation locale du réseau cristallin, d'un champ électrique ou d'une contrainte mécanique le long de l'axe de quantification du centre NV [28, 30] mais aussi sous l'effet de la température. C'est sur ce dernier effet que l'on va se concentrer dans la suite de cette sous-partie. Avant cela, revenons sur le second terme. Ce terme dit de clivage transverse résulte d'une déformation locale du réseau cristallin qui abaisse la symétrie du défaut. Cette déformation peut être causée par une contrainte mécanique ou bien un champ électrique appliqués perpendiculairement à l'axe  $z$  de quantification [82]. Elle induit une levée de dégénérescence entre les états  $m_s = \pm 1$  caractérisée par la constante  $\mathcal{E}$ . Les fréquences de résonance  $f_{\pm}$  correspondant aux transitions entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = -1$  et entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$  respectivement, sont alors égales, en champ magnétique nul, à :

$$f_{\pm} = D \pm \mathcal{E} \quad (1.2)$$

Pour le cas du centre NV isolé dans le diamant massif, le terme de clivage transverse est souvent faible ( $\mathcal{E} \approx 100$  kHz) mais dans les nanodiamants, ce terme peut atteindre plusieurs MHz et donc la levée de dégénérescence des états  $m_s = \pm 1$  devient visible sur le spectre de résonance magnétique (on observera ce phénomène dans le [Chapitre 2](#)).

Revenons sur l'effet de la température. Comme mentionné précédemment, le terme de clivage axial  $D$  peut être affecté par la température. En effet, lorsque la température évolue, la maille cristalline change conduisant à une modification de l'interaction entre les deux électrons non appariés du défaut, qui se traduit par une diminution de la valeur de  $D$  lorsque la température augmente (voir

Figure 1.6 (a). De manière naïve, plus la température augmente, plus le cristal se dilate donc plus la distance entre les deux électrons augmente et ainsi l'interaction entre ces derniers diminue. Autrement dit, l'effet de la température est visible sur la fréquence à laquelle la photoluminescence chute sur le spectre de résonance magnétique du spin électronique du centre NV. Sur la figure 1.6 (b) sont comparés deux spectres de résonance magnétique du spin électronique du centre NV pour les températures  $T_1 = 300$  K (en bleu) et  $T_2 = 350$  K (en rouge). On note bien un décalage vers les basses fréquences de la résonance magnétique lorsque la température augmente.

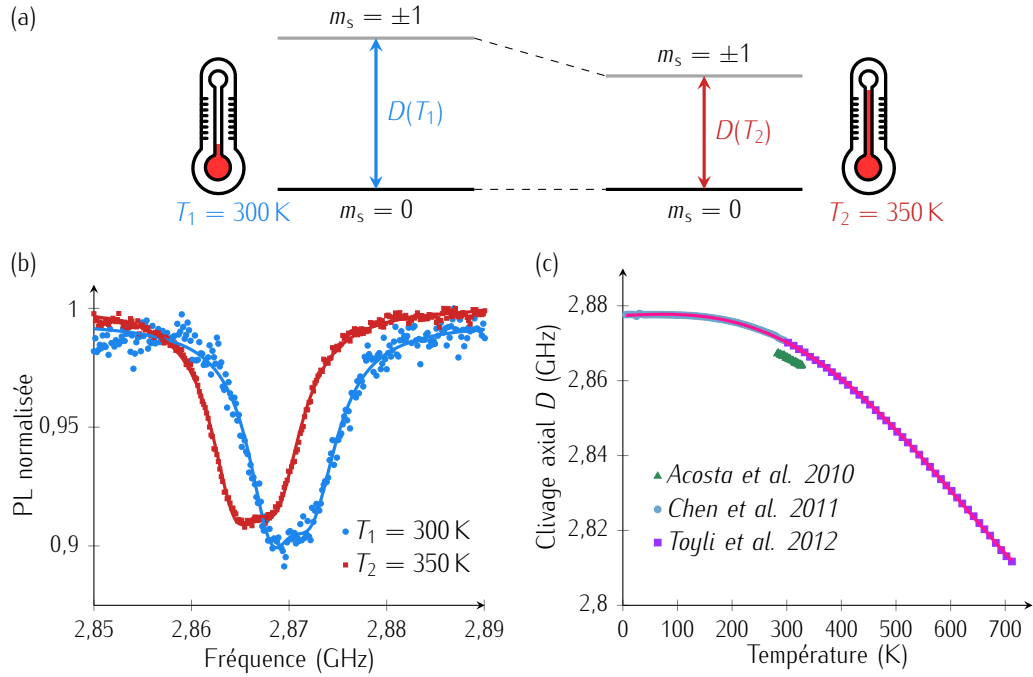


FIGURE 1.6 – (a) Schéma des niveaux d'énergie de l'état fondamental du centre NV sous l'effet d'une variation de température. Le terme de clivage axial  $D$  diminue lorsque la température augmente. (b) Spectres de résonance magnétique du spin électronique du centre NV pour les températures  $T_1 = 300$  K (en bleu) et  $T_2 = 350$  K (en rouge). (c) Évolution du terme de clivage axial  $D$  pour des températures de 5,6 K à 600 K provenant des références [83-85]. Cette variation peut être ajustée par une fonction polynomiale de degré 4 soit  $D(T) = a + bT + cT^2 + dT^3 + eT^4$  avec  $a = 2,8774 \times 10^9$  Hz,  $b = 6,4173 \times 10^3$  HzK $^{-1}$ ,  $c = 5,4966$  HzK $^{-2}$ ,  $d = -4,6845 \times 10^{-1}$  HzK $^{-3}$  et  $e = 3,747 \times 10^{-4}$  HzK $^{-4}$ .

C'est en 2010 que pour la première fois, l'évolution de  $D$  en fonction de la température est mesurée autour de la température ambiante [83]. Elle a été ensuite caractérisée à basse température [84] et jusqu'à 600 K [85] (voir Figure 1.6 (c)). Ces travaux confirment que le spin du centre NV peut être utilisé pour mesurer des variations de température sur une large gamme de température. Cependant, l'évolution de la position de  $D$  en fonction de la température est surtout significative pour des températures supérieures à 200 K (voir Figure 1.6 (c)). À température ambiante, la pente

caractéristique  $\frac{dD}{dT}$  vaut  $-74,2 \text{ kHz K}^{-1}$  [83] tandis que cette pente atteint environ  $-150 \text{ kHz K}^{-1}$  à une température autour de  $500 \text{ K}$  [85].

### 1.2.2 Effet d'un champ magnétique statique

En présence d'un champ magnétique statique externe, le Hamiltonien du système comprend un terme supplémentaire décrivant l'interaction Zeeman entre le champ magnétique et le spin électronique du centre NV. Le Hamiltonien décrit dans l'équation 1.1 est de fait modifié comme suit :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = DS_z^2 + \gamma_{\text{NV}} B_z S_z + \mathcal{E}(S_x^2 - S_y^2) + \gamma_{\text{NV}} (B_x S_x + B_y S_y) \quad (1.3)$$

où  $\gamma_{\text{NV}} = \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h} = 28 \text{ MHz mT}^{-1}$  est le facteur gyromagnétique du spin électronique du centre NV,  $g_{\text{NV}} = 2,0030$  est le facteur de Landé du centre NV,  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr et  $B_x$ ,  $B_y$  et  $B_z$  sont les trois composantes du champ magnétique dans le repère cartésien.

Pour comprendre l'impact des différentes composantes du champ magnétique  $B_x$ ,  $B_y$  et  $B_z$  sur les résonances de l'état de spin, on va réécrire le champ magnétique suivant deux composantes :  $B_{\text{NV}} = B_z$ , projection du champ suivant l'axe du centre NV, et  $B_{\perp} = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}$ , amplitude du champ magnétique perpendiculaire à l'axe du centre NV. On peut alors distinguer deux différents cas.

#### Régime de champ magnétique "faible"

Dans le cas où  $\gamma_{\text{NV}} B_{\perp} \ll D$  et  $\gamma_{\text{NV}} B_{\perp} \ll \gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$ , l'impact de la composante du champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$  est négligeable. On parle de régime de champ "faible". En calculant les niveaux d'énergie propres, on peut alors déterminer les fréquences de résonance  $f_{\pm}$  comme :

$$f_{\pm} = D \pm \sqrt{(\gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}})^2 + \mathcal{E}^2} \quad (1.4)$$

Deux cas limites apparaissent. Lorsque la composante parallèle du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  est inférieure à  $\frac{\mathcal{E}}{\gamma_{\text{NV}}}$ , c'est le terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$  qui domine. Dans ce régime, le centre NV est peu sensible aux variations de champ magnétique. Dans les nanodiamants,  $\mathcal{E}$  peut atteindre  $10 \text{ MHz}$ , ce qui implique que le centre NV est peu sensible aux champs magnétiques inférieurs à quelques centaines de  $\mu\text{T}$ . En revanche, lorsque  $B_{\text{NV}} \gg \frac{\mathcal{E}}{\gamma_{\text{NV}}}$ , l'évolution des fréquences de résonance  $f_{\pm}$  en fonction du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  devient linéaire (voir Figure 1.7 (a)-(c)). En mesurant l'évolution d'une des fréquences de résonance, on peut ainsi accéder à l'amplitude du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  sur le site du centre NV et ainsi réaliser un capteur de champ magnétique quantitatif.

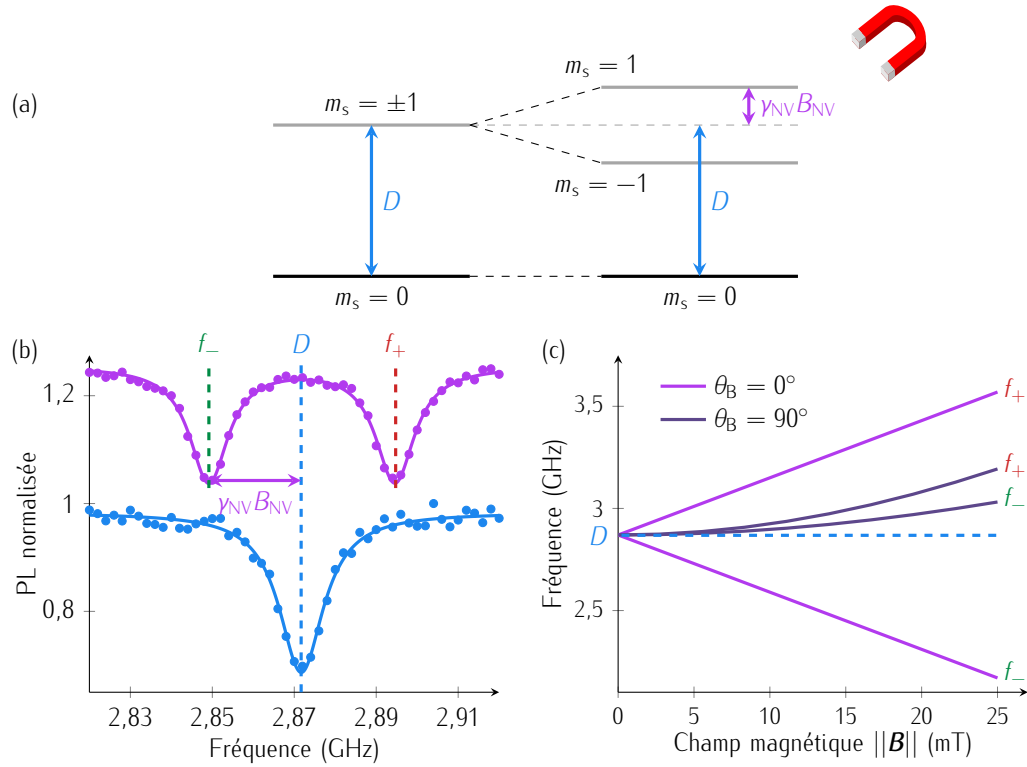


FIGURE 1.7 – (a) Schéma des niveaux d'énergie de l'état fondamental du centre NV sous l'effet d'un champ magnétique. Il en résulte un écartement des niveaux d'énergie  $m_s = \pm 1$  par l'effet Zeeman. (b) Comparaison d'un spectre de résonance magnétique sans champ magnétique (en bleu) et avec un champ magnétique externe aligné suivant l'axe de quantification du centre NV (en violet). Les fréquences de résonance correspondant aux deux transitions sont dénotées  $f_-$  et  $f_+$ . (c) Évolution des fréquences de résonance  $f_{\pm}$  en fonction du champ magnétique  $||\mathbf{B}||$  lorsque le champ magnétique est purement parallèle à l'axe de quantification du centre NV (soit  $\theta_B = 0^\circ$  en violet clair) ou purement perpendiculaire (soit  $\theta_B = 90^\circ$  en violet foncé),  $\theta_B$  désignant l'angle entre le champ magnétique et l'axe du centre NV.

## Régime de champ magnétique "fort"

En revanche, lorsque la condition  $\gamma_{NV} B_{\perp} \ll \gamma_{NV} B_{NV}$  n'est plus vérifiée, on rentre dans un régime dit de champ "fort", atteint pour des amplitudes de champ transverse  $B_{\perp}$  d'environ 5 mT. Dans ce cas, les fréquences de résonance  $f_{\pm}$  ne varient plus de manière symétrique par rapport à  $D$  à cause des composantes  $B_x$  et  $B_y$  qui ajoutent des termes non diagonaux et mélangent les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ . Ceci a pour conséquence d'induire un décalage des fréquences de résonance  $f_{\pm}$  vers les plus hautes fréquences indépendamment de la direction de la composante perpendiculaire du champ magnétique. La mesure d'une seule de ces fréquences de résonance ne suffit donc plus pour accéder à l'amplitude du champ magnétique. Il est alors nécessaire de mesurer les deux fréquences de résonance pour extraire de manière quantitative les composantes  $B_{NV}$  et  $B_{\perp}$  à température constante [86] (voir Figure 1.7 (c)). En plus d'induire un décalage asymétrique des fréquences de résonance, le régime

de champ fort induit un mélange des états de spin, qui se traduit par une diminution progressive du contraste  $\mathcal{C}$  des résonances magnétiques. Cette diminution du contraste avec l'amplitude du champ magnétique prohibe toute mesure quantitative du champ magnétique en régime de champ très fort. En pratique, cela limite l'applicabilité de la magnétométrie via la mesure du spectre de résonance magnétique à des champs d'amplitude inférieure à 20 mT typiquement. Notons cependant qu'un fort champ magnétique transverse a pour effets de diminuer le contraste mais aussi l'intensité moyenne de fluorescence et le temps de vie moyen du niveau excité. Cet effet peut être mis à profit pour réaliser des cartographies qualitatives du champ magnétique de fuite provenant d'un échantillon produisant un champ fort, par le biais de mesures d'extinction de photoluminescence du centre NV [81].

### 1.2.3 Effet d'un champ électrique statique

De la même manière que lors d'un couplage avec le champ magnétique par l'effet Zeeman, le spin électronique du centre NV peut se coupler à un champ électrique. On appelle cet effet analogue l'effet Stark. On peut alors écrire le Hamiltonien du spin électronique en ajoutant la contribution du couplage avec un champ électrique qui décrit l'effet Stark linéaire pour des systèmes avec une symétrie  $C_{3v}$  comme [28, 78, 82, 87] :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{h} = & DS_z^2 + \gamma_{\text{NV}} B_z S_z + \mathcal{E}(S_x^2 - S_y^2) + \gamma_{\text{NV}} (B_x S_x + B_y S_y) \\ & + d_{\parallel} E_z S_z^2 - d_{\perp} \left[ E_x (S_x^2 - S_y^2) - E_y (S_x S_y + S_y S_x) \right] \end{aligned} \quad (1.5)$$

avec  $E_x$ ,  $E_y$ ,  $E_z$  les trois composantes du champ électrique dans le repère cartésien,  $d_{\parallel} = 0,35 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  [88] et  $d_{\perp} = 17 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  [88] correspondant aux termes de couplage du spin électronique avec le champ électrique parallèle et perpendiculaire à l'axe de quantification du centre NV.

On discutera en détail dans le [Chapitre 4](#) de cet Hamiltonien complet mais pour comprendre l'effet d'un champ électrique externe sur le spin électronique, on va se placer dans le cas précis où le champ magnétique est parfaitement nul ainsi que le terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$ . Bien que ce dernier terme provienne d'un champ électrique intrinsèque dans l'environnement du centre NV et a le même effet que le champ électrique sur le spin électronique [89], on va le considérer nul dans cette partie afin de simplifier la compréhension de l'effet d'un champ électrique externe. On peut alors réécrire le Hamiltonien comme :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = (D + d_{\parallel} E_z) S_z^2 - d_{\perp} \left[ E_x (S_x^2 - S_y^2) - E_y (S_x S_y + S_y S_x) \right] \quad (1.6)$$



De la même manière que pour le champ magnétique, on définit  $E_{NV} = E_z$  ainsi que  $E_{\perp} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2}$ . En calculant les niveaux d'énergie propres, on peut alors déterminer les fréquences de résonance  $f_{\pm}$  comme :

$$f_{\pm} = (D + d_{\parallel}E_{NV}) \pm d_{\perp}E_{\perp} \quad (1.7)$$

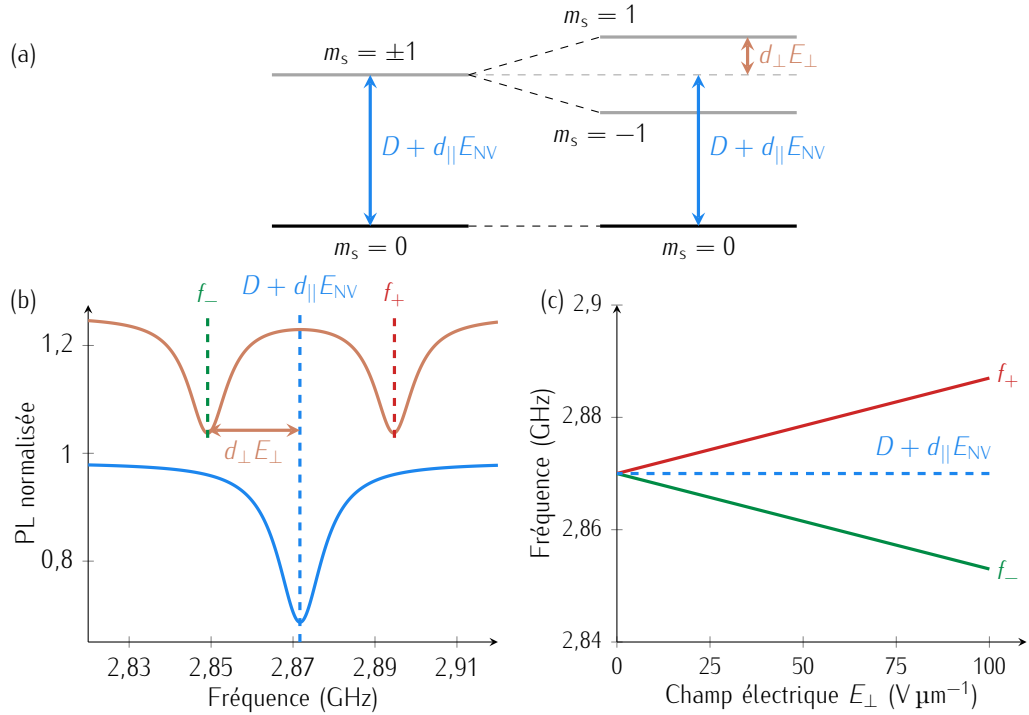


FIGURE 1.8 – (a) Schéma des niveaux d'énergie de l'état fondamental du centre NV sous l'effet d'un champ électrique. La composante perpendiculaire du champ électrique  $E_{\perp}$  induit un écartement des niveaux d'énergie  $m_s = \pm 1$  tandis que la composante parallèle du champ électrique  $E_{NV}$  provoque un décalage de la raie de résonance. (b) Comparaison d'un spectre de résonance magnétique lorsque  $E_{\perp} = 0 \text{ V m}^{-1}$  (en bleu) et lorsque  $E_{\perp} \neq 0 \text{ V m}^{-1}$  (en saumon). Dans les deux cas on a  $E_{NV} \neq 0 \text{ V m}^{-1}$ . Les fréquences de résonance correspondant aux deux transitions sont dénotées  $f_{-}$  et  $f_{+}$ . (c) Évolution des fréquences de résonance  $f_{\pm}$  en fonction de la composante perpendiculaire du champ électrique  $E_{\perp}$ .

On peut alors mettre en évidence que l'effet de la composante parallèle à l'axe de quantification du centre NV induit le même effet que le terme de clivage axial  $D$ . Autrement dit, un champ électrique aligné avec l'axe du centre NV va décaler les deux raies de résonance de la même manière et ce décalage est linéaire avec la composante du champ électrique  $E_{NV}$  (voir Figure 1.8 (a)-(b)). En revanche, la composante du champ électrique perpendiculaire  $E_{\perp}$  va, quant à elle, lever la dégénérescence entre les états  $m_s = \pm 1$  par l'effet Stark. On retrouve alors deux raies de résonance séparées entre elles par  $2d_{\perp}E_{\perp}$ . Autrement dit, l'écart entre ces deux raies permet d'avoir directement l'information sur la composante perpendiculaire du champ électrique  $E_{\perp}$  (voir Figure 1.8 (a)-(b)). Par ailleurs, contrairement au cas du champ magnétique, il n'y a pas de régime de champs "faible" ou

"fort" puisque c'est la composante perpendiculaire du champ électrique qui induit l'effet Stark et ainsi l'évolution de l'écart entre les raies de résonance reste linéaire, peu importe la valeur du champ électrique couplé avec le spin électronique du centre NV (voir [Figure 1.8 \(c\)](#)). Enfin, même si les contributions du champ électrique  $E_{NV}$  et  $E_{\perp}$  n'ont pas le même effet sur les raies de résonance, leurs couplages avec le spin électronique du centre NV est aussi différent. En effet, le couplage perpendiculaire  $d_{\perp}$  est environ 50 fois plus important que le couplage parallèle  $d_{\parallel}$  rendant, de ce fait, le centre NV plus sensible à la composante perpendiculaire du champ électrique.

### 1.2.4 Effet de l'interaction avec le spin nucléaire de l'azote

Il existe deux isotopes stables pour l'atome d'azote : l'azote  $^{14}\text{N}$  de spin nucléaire de  $I = 1$  et l'azote  $^{15}\text{N}$  de spin nucléaire  $I = \frac{1}{2}$ . Le plus abondant est  $^{14}\text{N}$  (à 99,6%). On choisit, par la suite, le cas le plus probable où l'atome d'azote composant le centre NV possède un spin nucléaire  $I = 1$ . Le spin électronique du centre NV va alors interagir avec ce spin nucléaire, ajoutant un terme supplémentaire dans le Hamiltonien :

$$\frac{\mathcal{H}_0}{h} = \frac{\mathcal{H}}{h} + \mathcal{Q}_{\text{nuc}} \left[ I_z^2 - \frac{1}{3}I(I+1) \right] + \gamma_{\text{nuc}} (B_x I_x + B_y I_y + B_z I_z) + \hat{S} \tilde{\mathcal{A}}_{\text{nuc}} \hat{I} \quad (1.8)$$

avec  $\frac{\mathcal{H}}{h}$  le Hamiltonien décrit par l'[équation 1.5](#),  $\gamma_{\text{nuc}}$  est le rapport gyromagnétique du spin nucléaire de l'azote,  $\mathcal{Q}_{\text{nuc}}$  est la constante quadripolaire électrique,  $\tilde{\mathcal{A}}_{\text{nuc}}$  est le tenseur hyperfin et  $I_x$ ,  $I_y$  et  $I_z$  sont les opérateurs associés au spin nucléaire de l'azote. L'axe de quantification  $z$  du spin nucléaire est le même que celui du spin électronique.

De la même manière que le terme  $\frac{S(S+1)}{3}$ , le terme  $\frac{I(I+1)}{3}$  est une constante qui induit le même décalage sur tous les niveaux d'énergie et qui ne nécessite pas une prise en compte dans le cas où on s'intéresse aux écarts entre les niveaux d'énergie.

Par ailleurs, dans les contributions provenant de l'interaction entre ce spin nucléaire et le spin électronique, on a trois termes. Le premier est un terme d'interaction quadripolaire électrique, conséquence de la non-symétrie sphérique des charges du noyau, provenant du fait que  $I > \frac{1}{2}$  [90]. La constante d'interaction quadripolaire électrique vaut  $\mathcal{Q}_{\text{nuc}} \approx -4,95 \text{ MHz}$  [91]. Cette contribution va induire une levée de dégénérescence entre les états de spin nucléaire  $m_I = 0$  et les états  $m_I = \pm 1$  et un changement d'ordre des niveaux d'énergie des multiplets dans les états  $m_s = \pm 1$ . Le second terme correspond à l'interaction Zeeman entre le spin nucléaire et le champ magnétique. Cette interaction Zeeman nucléaire est très faible comparativement à l'interaction Zeeman avec le spin électronique, puisque le facteur gyromagnétique de l'azote  $^{14}\text{N}$  vaut  $\gamma_{\text{nuc}} \approx 3,1 \text{ kHz mT}^{-1}$ . Ce terme est de fait souvent négligé. Le dernier terme représente l'interaction hyperfine qui correspond

au couplage du spin nucléaire de l'atome d'azote avec le spin électronique du centre NV. Cette interaction comprend l'interaction de contact de Fermi résultant du recouvrement des fonctions d'onde de spins, ainsi que l'interaction dipolaire magnétique [90]. Dans la base  $xyz$  liée au centre NV, la matrice décrivant le tenseur hyperfin  $\tilde{\mathcal{A}}_{\text{nuc}}$  est diagonale. En développant le terme d'interaction hyperfine et en se plaçant dans l'approximation séculaire, le Hamiltonien  $\mathcal{H}_0$  du système s'écrit comme :

$$\frac{\mathcal{H}_0}{h} = \frac{\mathcal{H}}{h} + \mathcal{Q}_{\text{nuc}} I_z^2 + \gamma_{\text{nuc}} (B_x I_x + B_y I_y + B_z I_z) + \mathcal{A}_{zz} S_z I_z \quad (1.9)$$

avec  $\mathcal{A}_{zz}$  la composante longitudinale du tenseur hyperfin qui vaut  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16$  MHz [91].

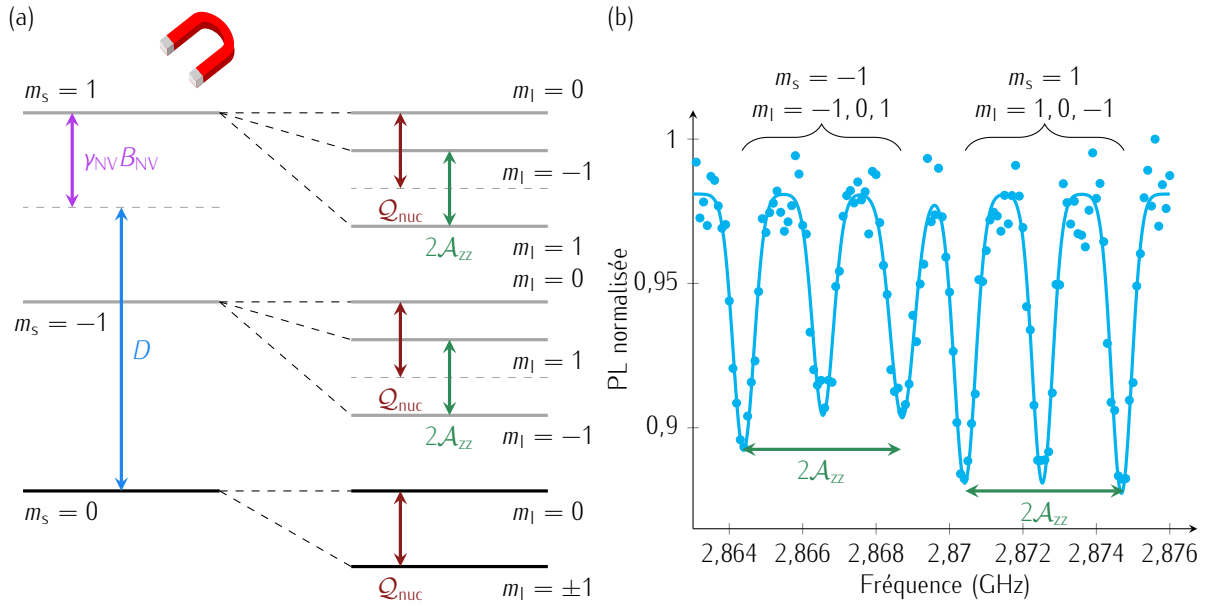


FIGURE 1.9 – (a) Schéma des niveaux d'énergie de l'état fondamental du centre NV sous l'effet d'un champ magnétique en prenant en compte le couplage hyperfin avec le spin nucléaire  $I = 1$  de l'azote  $^{14}\text{N}$ . Le terme quadrupolaire électrique  $\mathcal{Q}_{\text{nuc}}$  vaut  $\mathcal{Q}_{\text{nuc}} \approx -4,95$  MHz et le terme hyperfin  $\mathcal{A}_{zz}$  vaut  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16$  MHz. (b) Spectre de résonance magnétique mesuré dans un régime d'excitation impulsionnel (protocole décrit dans la suite : [Partie 1.4](#)) permettant d'observer les six raies de résonance liées au couplage du spin électronique d'un centre NV unique avec son spin nucléaire.

Le couplage entre le spin électronique du centre NV et le spin nucléaire de l'azote induit une modification des états propres du système. Les états propres sont alors  $|m_s, m_I\rangle$  avec  $m_s = 0, \pm 1$  et  $m_I = 0, \pm 1$ . On se retrouve non plus avec trois niveaux d'énergie mais  $3(2I + 1)$  niveaux d'énergie, soit 9 niveaux d'énergie (voir [Figure 1.9](#) (a)). Or, les transitions de type dipolaire magnétique imposent de conserver la projection du spin nucléaire suivant l'axe  $z$ , c'est-à-dire  $\Delta m_I = 0$ . La structure hyperfine du centre  $^{14}\text{NV}$  possède donc six transitions autorisées, correspondant aux six raies observées sur le spectre de résonance de la [Figure 1.9](#) (b). Ces six raies correspondent aux transitions entre les états  $|0, m_I\rangle$  et les états  $|-1, m_I\rangle$  ainsi qu'entre les états  $|0, m_I\rangle$  et les états  $|1, m_I\rangle$  avec  $m_I = -1, 0, 1$ . Plus précisément, le spectre de résonance magnétique présente deux

groupes de trois fréquences de résonance et pour chacun de ces groupes, les trois fréquences sont séparées de la valeur du terme longitudinal  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16$  MHz (voir [Figure 1.9 \(b\)](#)).

Indiquons déjà que la mesure du spectre de résonance magnétique d'un centre NV unique par des excitations laser et micro-onde continues ne permet pas de résoudre ces six fréquences de résonance. En effet, l'élargissement des raies de résonance induit par les excitations laser et micro-onde est plus grand que l'écart entre ces fréquences de résonance. En régime d'excitation optique et micro-onde continue, on n'observe donc pas six raies de résonance mais uniquement deux avec une largeur de raie typique d'environ  $\Delta\nu = 10$  MHz. La résolution de la structure hyperfine nécessite de fait de réaliser la mesure dans un régime d'excitation impulsionnel que l'on discutera un peu plus tard dans le chapitre.

## 1.3 Dynamique de relaxation du spin électronique

Avant de détailler les protocoles de mesure pour réaliser un capteur à centre NV et identifier les paramètres clefs qui impactent sa sensibilité, il est intéressant de discuter des propriétés temporelles de l'état de spin du centre NV, c'est-à-dire des temps de relaxation et cohérences qui le caractérisent. D'abord, je vais introduire le temps de relaxation longitudinal  $T_1$  et la méthode de mesure de ce temps. Puis, je vais traiter des temps de cohérences  $T_2^*$  et  $T_2$  ainsi que la méthode pour mesurer ces deux temps caractéristiques.

### 1.3.1 Temps de relaxation $T_1$

Le temps de relaxation  $T_1$ , aussi appelé temps de relaxation longitudinal ou durée de vie du spin, correspond au temps nécessaire afin que le système, placé hors équilibre, retourne à son état d'équilibre thermodynamique. Autrement dit, dans le cas présent, lorsque l'on polarise le centre NV dans un état de spin particulier, le temps de relaxation  $T_1$  correspond au temps que met le système à retourner dans une distribution de Boltzmann des populations entre les trois niveaux d'énergie  $m_s = 0$ ,  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$ . Cette relaxation est intrinsèquement liée aux interactions avec les modes de phonons du réseau [92] et de ce fait, dépend de la température. À température ambiante, ce temps caractéristique est de l'ordre de quelques ms tandis qu'il peut atteindre 100 s à 4 K [92]. Par ailleurs, ce temps de relaxation peut aussi être affecté par une fluctuation de champ magnétique de moyenne nulle (bruit magnétique) comme on le verra dans le [Chapitre 3](#).

Pour mesurer ce temps caractéristique, le système est, dans un premier temps, polarisé dans l'état  $m_s = 0$  à l'aide d'une impulsion laser et dans un second temps, on laisse évoluer ce dernier dans le

noir pendant un temps d'attente  $\tau$  variable. Enfin, une seconde impulsion permet de lire l'état de spin du système (début de l'impulsion) mais aussi de repolariser le centre NV dans l'état  $m_s = 0$  (fin de l'impulsion) (voir Figure 1.10 (a)). Le signal de photoluminescence normalisé est alors calculé en divisant le taux de photoluminescence obtenu au début de l'impulsion laser (informant sur l'état de spin du système) par celui obtenu en fin de l'impulsion laser. Lorsque le temps d'attente  $\tau \ll T_1$ , le système est toujours polarisé dans l'état brillant  $m_s = 0$  car il n'a pas eu le temps de revenir dans l'état d'équilibre. Dans ce régime, la photoluminescence est maximale. En revanche, lorsque  $\tau \gg T_1$ , le système est retourné à l'état d'équilibre thermodynamique et la photoluminescence est plus faible. L'évolution du signal de photoluminescence en fonction du temps d'attente  $\tau$  varie suivant une exponentielle décroissante dont le temps caractéristique est directement la valeur du temps de relaxation  $T_1$  (voir Figure 1.10 (b)). Sur cet exemple, le temps de relaxation longitudinal est de  $T_1 \approx 5$  ms. Ce temps est une valeur typique pour un centre NV unique dans un diamant massif à température ambiante lorsque la relaxation est limitée par les interactions avec les modes de phonons du réseau.

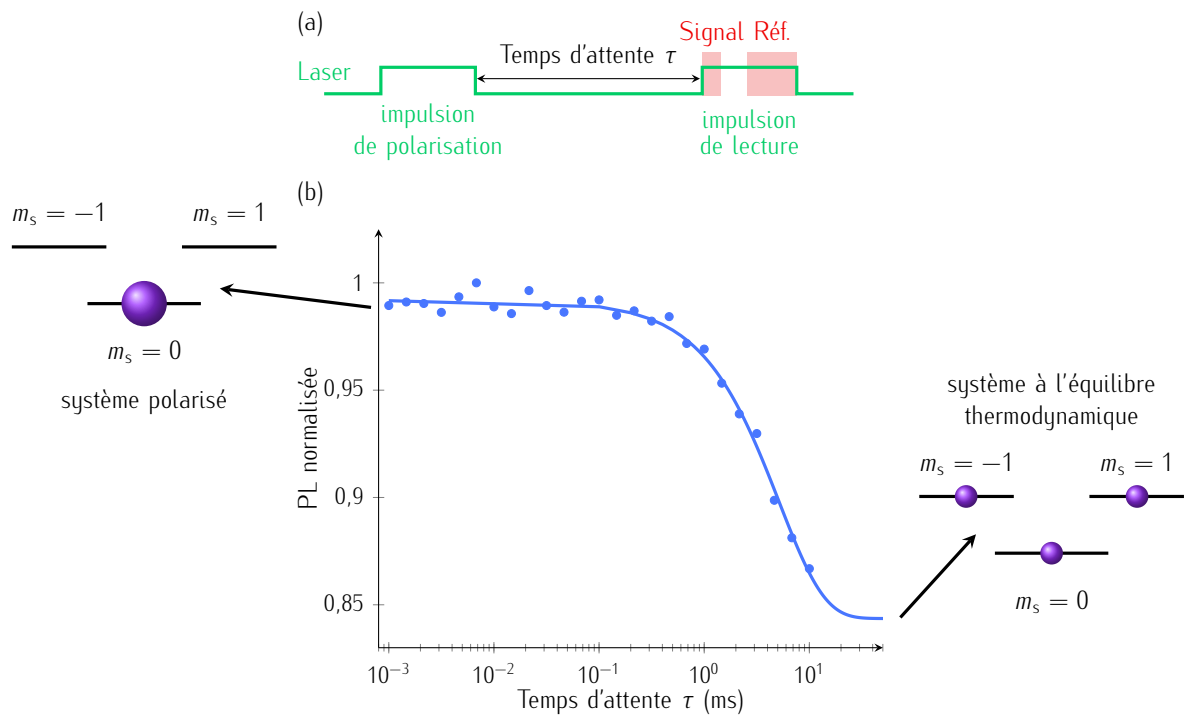


FIGURE 1.10 – (a) Séquence de mesure du temps de relaxation  $T_1$ . La première impulsion laser permet de polariser le système dans l'état  $m_s = 0$ . Le système évolue ensuite dans le noir pendant un temps d'attente variable  $\tau$ , puis une seconde impulsion laser permet de lire l'état de spin (début de l'impulsion) et repolariser le spin dans l'état  $m_s = 0$  (fin de l'impulsion). (b) Courbe type de la mesure du temps de relaxation  $T_1$  d'un centre NV unique dans un diamant massif (ici  $T_1 \approx 5$  ms).

### 1.3.2 Temps de cohérence $T_2^*$ et $T_2$

Contrairement au temps de relaxation  $T_1$ , les temps de relaxation transverses  $T_2^*$  et  $T_2$ , autrement appelés temps de cohérence, permettent d'obtenir une information sur la perte de cohérence du système initialement placé dans une superposition d'état  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = \pm 1\rangle)$ . Les temps  $T_2^*$  et  $T_2$  sont respectivement les temps de cohérence lors d'une précession libre ou lors d'une séquence d'écho de spin. Pour mesurer ces temps, il convient de placer initialement l'état de spin dans une superposition d'états et de sonder ensuite l'évolution du système. Cette manipulation initiale de l'état de spin s'appuie sur des mesures d'oscillations de Rabi entre les deux états  $|m_s = 0\rangle$  et  $|m_s = \pm 1\rangle$  [39]. Avant de décrire les protocoles de mesure de ces deux temps de cohérence, on commence par décrire le protocole expérimental pour enregistrer les oscillations de Rabi, en ne considérant que la transition entre l'état  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$  par simplification.

#### Oscillation de Rabi

Le mesure d'une oscillation de Rabi entre les deux états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$  se fait en plusieurs étapes. Elle nécessite d'utiliser des impulsions laser ainsi que des impulsions micro-onde. La séquence d'impulsions employée est représentée sur la [figure 1.11](#) (a). Dans un premier temps, une impulsion laser permet de polariser le système dans l'état  $m_s = 0$ . Après un délai, en général de  $1 \mu\text{s}$ , permettant aux populations piégées dans l'état métastable de relaxer dans l'état fondamental, on applique une impulsion micro-onde de durée  $T_{\text{mw}}$  et accordée sur la fréquence de résonance de la transition entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ . Après cette manipulation du spin, une seconde impulsion laser permet, d'une part de lire l'état de spin du système puis, d'autre part, de polariser à nouveau le système dans l'état  $m_s = 0$ . Le signal de photoluminescence est extrait de la même manière que pour le temps de relaxation  $T_1$  en prenant le rapport entre le signal de photoluminescence au début de l'impulsion laser et celui à la fin de l'impulsion. Cette séquence est répétée un grand nombre de fois pour différentes durées de l'impulsion micro-onde. La courbe obtenue est celle d'un signal oscillant amorti (voir [Figure 1.11](#) (c)). Lorsque le signal de photoluminescence est maximum, le système se trouve dans l'état  $m_s = 0$ . En revanche, lorsque le signal de photoluminescence atteint un minimum, le système se trouve dans l'état  $m_s = 1$ . L'oscillation du niveau de fluorescence du centre est le reflet de l'évolution cohérente du système entre ces deux états de spin  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ . Elle correspond à une nutation du spin dans la sphère de Bloch (voir [Figure 1.11](#)(b)). Ce signal d'oscillations permet de déterminer la durée de l'impulsion micro-onde  $T_\pi$ . Cette durée correspond à la durée minimum de l'impulsion micro-onde pour transférer toutes les populations de l'état  $m_s = 0$  à l'état  $m_s = 1$ . Autrement dit, après cette durée  $T_\pi$  le système est polarisé dans l'état  $m_s = 1$ . On peut aussi en déduire la durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  qui correspond à la durée  $\frac{T_\pi}{2}$  et qui permet de positionner le système dans une

superposition quantique d'états  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = 1\rangle)$  (voir Figure 1.11 (b)-(c)). Ces temps peuvent être ajustés en variant la puissance micro-onde appliquée sur le centre NV.

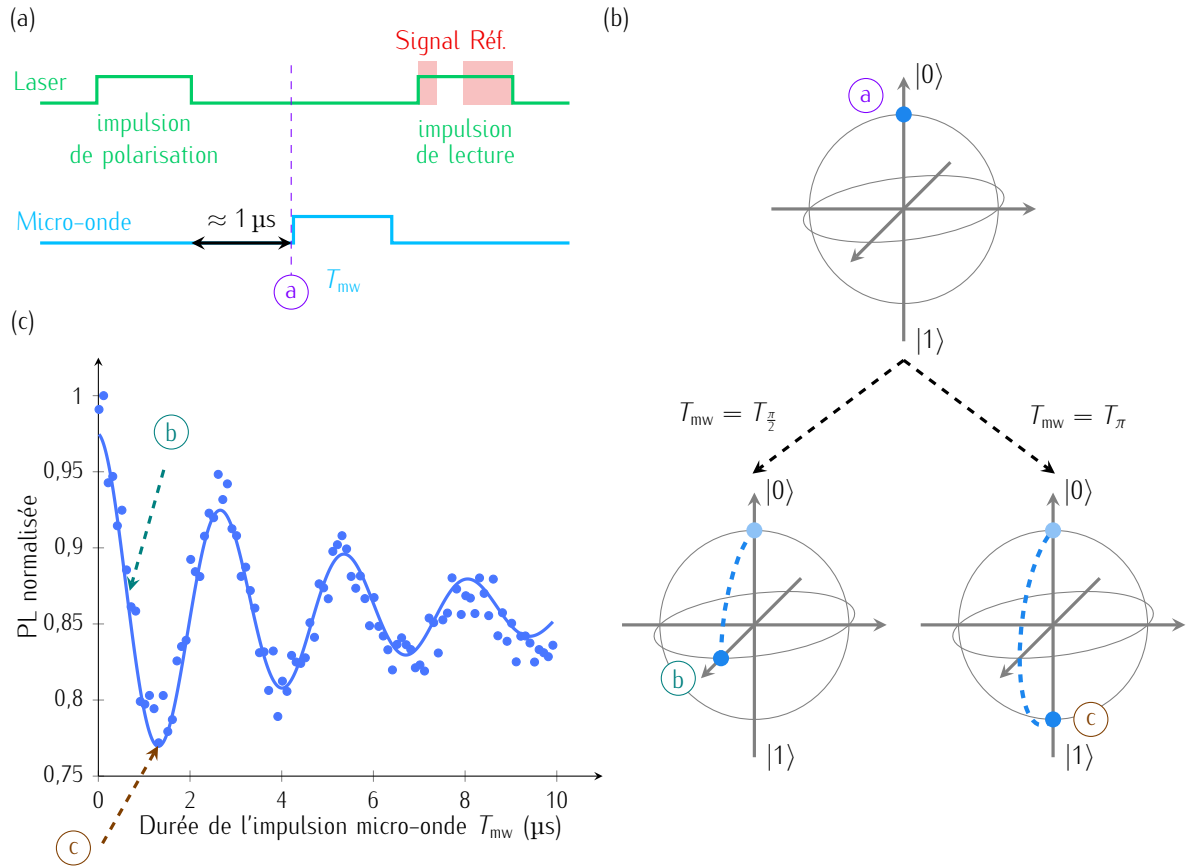


FIGURE 1.11 – (a) Séquence de mesure de l’oscillation de Rabi. La première impulsion laser permet de polariser le système dans l’état  $m_s = 0$ . On applique ensuite, après un délai d’environ  $1 \mu s$ , une impulsion micro-onde de durée variable  $T_{mw}$ , puis une seconde impulsion laser pour lire l’état de spin (début de l’impulsion) et repolariser le spin dans l’état  $m_s = 0$  (fin de l’impulsion). (b) Représentation de l’état de spin dans la sphère de Bloch lorsque l’on applique une impulsion micro-onde  $T_{mw} = T_{\pi/2}$  et lorsque l’on applique une impulsion micro-onde  $T_{mw} = T_{\pi}$ . (c) Courbe typique de l’oscillation de Rabi d’un centre NV unique dans un diamant massif. La fonction d’ajustement est  $\mathcal{F}(x) = \alpha \cos(2\pi f x) \exp(-\beta x)$  avec  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $f$  les paramètres d’ajustement. On peut alors extraire la durée  $T_{\pi} \approx 1,35 \mu s$  (point (c)) et par extension la durée  $T_{\pi/2}$  (point (b)).

### Temps de cohérence $T_2^*$

Le temps de cohérence  $T_2^*$  est le temps de décohérence du système lors d’une précession libre. Il peut être mesuré par le biais de la mesure des franges de Ramsey. La séquence d’impulsions appliquée est représentée sur la figure 1.12 (a). Le système est initialement polarisé dans l’état  $m_s = 0$  par pompage optique. Puis, une impulsion micro-onde de durée  $T_{\pi/2}$  permet de préparer le système dans la superposition quantique d’états  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = 1\rangle)$ . Le système précesse ensuite librement durant un temps d’attente variable  $\tau$ , permettant aux cohérences d’osciller

à la fréquence de désaccord entre le champ micro-onde et la fréquence de résonance instantanée du système. Une seconde impulsion micro-onde de durée  $T_{\pi/2}$  est ensuite appliquée, pour transférer l'état des cohérences sur l'axe des populations afin de lire l'état de spin au travers d'une seconde impulsion laser. La représentation de cette séquence de Ramsey dans la sphère de Bloch est montrée sur la [figure 1.12 \(b\)](#). Le signal de photoluminescence en fonction du temps d'attente  $\tau$  se caractérise alors par une oscillation à la fréquence de désaccord entre la fréquence de résonance et la fréquence micro-onde utilisée (voir [Figure 1.12 \(c\)](#)). De plus, l'enveloppe de ces franges suit une décroissance gaussienne provenant de l'environnement non-markovien du centre NV avec comme temps caractéristique le temps de cohérence  $T_2^*$ . Dans le cas du centre NV, lorsqu'on ne considère que la transition entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ , le couplage avec le spin nucléaire de l'azote résulte en trois fréquences de résonance séparées de  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16$  MHz. Le signal obtenu est alors la somme de trois oscillations associées aux trois résonances de fréquence distincte dénotées  $i$ . Sa fonction d'ajustement est, de fait, de la forme :  $\mathcal{F} = \exp(-\frac{\tau}{T_2^*})^2 \times \sum_i \alpha_i \sin(2\pi f_i t + \psi_i)$  avec  $f_i$  la différence entre la fréquence de résonance de transition hyperfine  $i$  et la fréquence d'excitation micro-onde, et  $\psi_i$  sa phase associée (voir [Figure 1.12 \(c\)](#)).

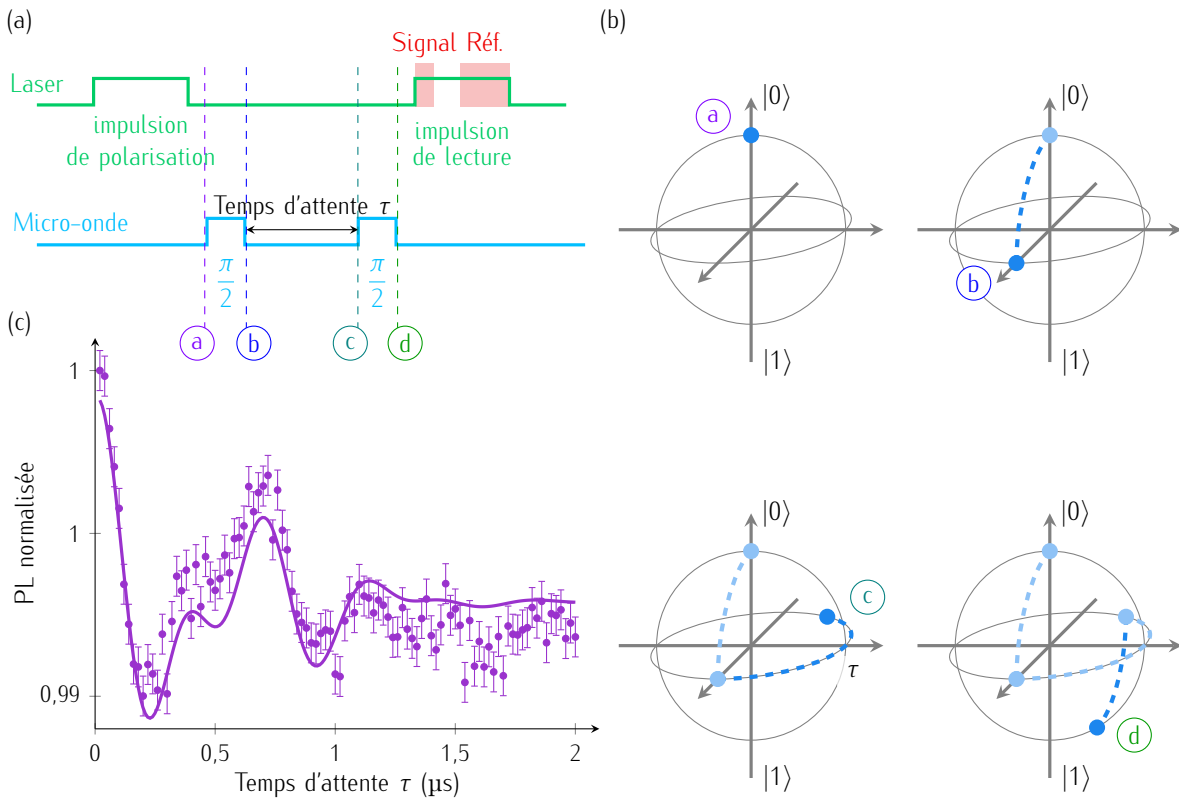


FIGURE 1.12 – (a) Séquence de franges de Ramsey pour mesurer le temps de cohérence  $T_2^*$  lors d'une précession libre. (b) Représentation dans la sphère de Bloch de cette séquence de franges de Ramsey. (c) Courbe caractéristique du signal de précession libre d'un petit ensemble de centres NV. L'ajustement de cette courbe nous permet d'extraire la durée  $T_2^* \approx 860$  ns.



La perte de cohérence résulte des interactions spin-spin avec les impuretés paramagnétiques autour du centre NV [93, 94]. Les principales impuretés paramagnétiques sont les spins nucléaires associés aux atomes de  $^{13}\text{C}$  résiduels (à hauteur de 1,1% dans du diamant d'abondance isotopique naturelle), les spins électroniques associés aux impuretés d'azote, ou encore les spins électroniques associés aux états de surface. Dans le cas du diamant massif d'abondance isotopique naturelle de carbone avec une majorité de carbone  $^{12}\text{C}$  sans spin, la valeur typique du temps de cohérence  $T_2^*$  est de  $T_2^* \sim 1 \mu\text{s}$  [95]. Ce temps de cohérence  $T_2^*$  peut être augmenté dans des diamants enrichis en  $^{12}\text{C}$  et peut alors atteindre une valeur de l'ordre de 500  $\mu\text{s}$  à température ambiante [96].

## Temps de cohérence $T_2$

Outre l'utilisation de diamant enrichi en  $^{12}\text{C}$ , un second moyen de prolonger le temps de cohérence s'appuie sur des techniques de découplage dynamique, permettant de rendre le système moins sensible à l'environnement [97, 98]. Dans ces techniques, le spin est retourné périodiquement par le biais d'une ou plusieurs impulsion(s) micro-onde dans le but de compenser la phase aléatoire accumulée à cause du couplage avec le bain de spins [99]. La séquence la plus simple de découplage dynamique est celle d'écho de spin, proposée par Hahn [100]. Cette séquence est présentée sur la figure 1.13 (a). De la même manière que dans la séquence de Ramsey, le système est tout d'abord polarisé dans l'état  $m_s = 0$  par pompage optique, puis préparé dans la superposition d'états  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = \pm 1\rangle)$  par une impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  à la fréquence de résonance. Le système évolue ensuite librement pendant un temps d'attente variable  $\frac{\tau}{2}$ . Au cours du temps de précession libre, les cohérences accumulent une phase différente suivant les réalisations de la mesure puisque cette phase dépend du champ magnétique aléatoire produit par l'environnement et ressenti par le centre NV. Pour s'affranchir de ces déphasages multiples, une impulsion de durée  $T_{\pi}$  est appliquée au spin électronique puis le système évolue à nouveau librement pendant le même temps d'attente variable  $\frac{\tau}{2}$  (voir Figure 1.12 (a)-(b)). Si le champ magnétique environnant n'évolue pas au cours de la séquence, l'application de cette impulsion de durée  $T_{\pi}$  permet de rephaser les cohérences du système et donc d'allonger le temps de cohérence. Suite à cette manipulation de l'état de spin, une impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  permet finalement de transférer les cohérences sur l'axe des populations, mesurées au cours de l'impulsion laser suivante. Le signal de photoluminescence obtenu en fonction du temps  $\tau$  suit une loi de type exponentielle décroissante à la puissance  $n$  (voir Figure 1.12 (c)). La valeur de  $n$  dépend de l'environnement du centre NV [101]. Dans notre cas, on voit que  $n$  vaut 1 et le temps de cohérence obtenu suivant cette technique atteint  $T_2 \approx 63 \mu\text{s}$  dans nos expériences. Il peut même atteindre plusieurs centaines de microsecondes [102] sur un centre unique. On voit que le temps de cohérence est bien augmenté, de près de deux ordres de grandeur environ par rapport à la séquence de précession libre. Notons que pour des diamants ultrapurs enrichis en  $^{12}\text{C}$ , le temps de cohérence d'écho de spin peut atteindre quelques millisecondes [40].

Indiquons d'autre part que des séquences de découplage dynamique plus complexes existent et permettent d'augmenter de manière encore plus significative le temps de cohérence [103-105] jusqu'à atteindre 0,5 s à 77 K [106].

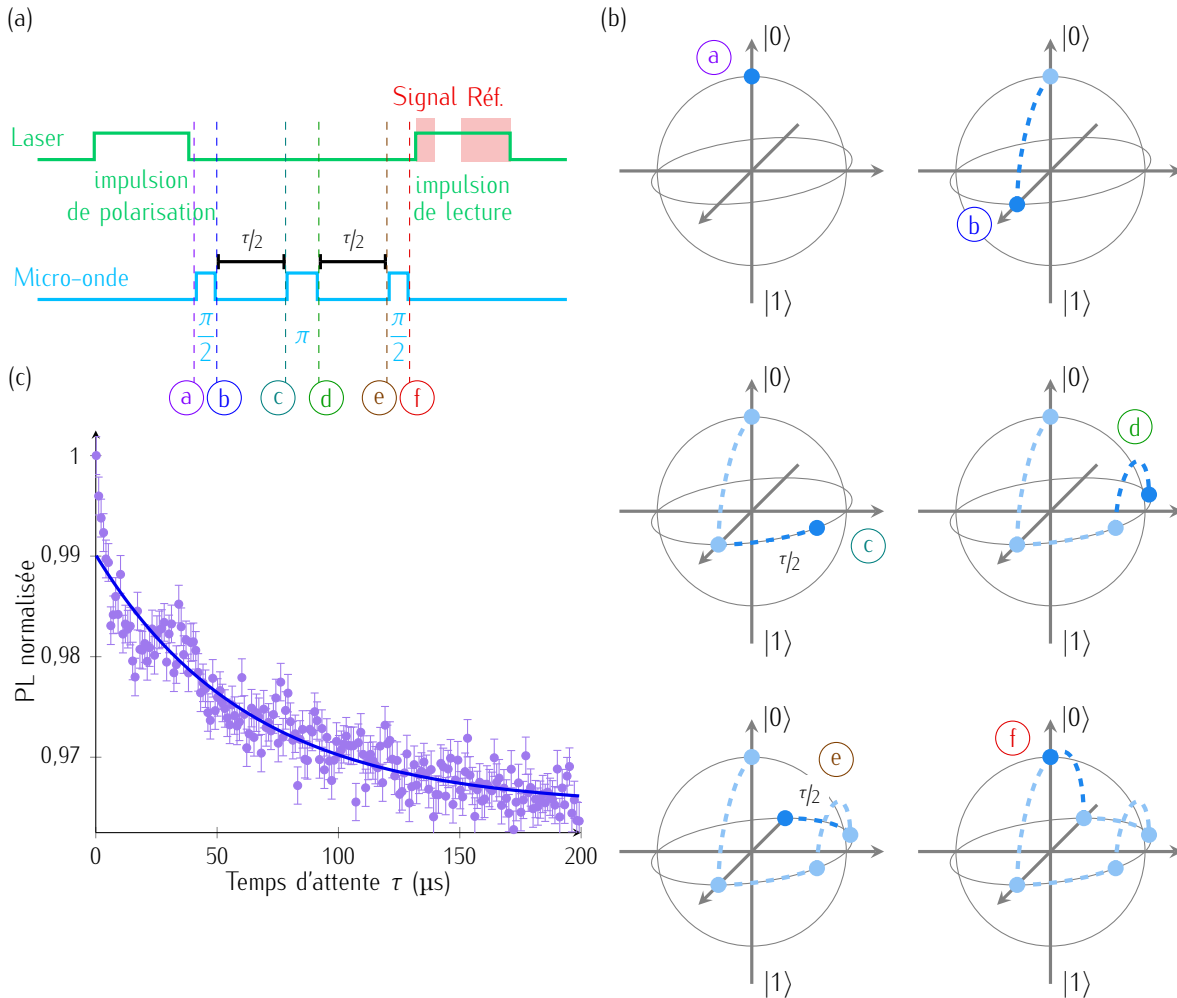


FIGURE 1.13 – (a) Séquence de mesure du temps de cohérence d'écho de spin  $T_2$ . (b) Représentation dans la sphère de Bloch de cette séquence d'écho de spin. (c) Courbe caractéristique du signal d'écho de spin d'un petit ensemble de centres NV sous un champ magnétique  $B_{\text{NV}} = 4,75 \text{ mT}$ . La fonction d'ajustement est  $\mathcal{F} = \alpha \exp((-\frac{\tau}{T_2})^n)$ . Dans le cas présent  $n = 1$  et  $T_2 \approx 63 \mu\text{s}$ .

Ces grandeurs caractéristiques associées au spin électronique du centre NV sont importantes car elles limitent la sensibilité à son environnement et par extension son efficacité en tant que capteur. Dans la partie suivante, on va s'intéresser à deux protocoles de mesure et discuter du lien entre ces temps caractéristiques et la sensibilité limite qu'il est possible d'atteindre par ces deux protocoles.

## 1.4 Protocoles de mesure et sensibilité

Dans cette partie, je vais me focaliser sur deux protocoles de mesure différents employés pour utiliser le centre NV comme capteur (ici de température), en identifiant les paramètres qui limitent leurs sensibilités. Le premier repose sur des excitations laser et micro-onde continues. Le second recourt à des excitations laser et micro-onde impulsionnelles.

### 1.4.1 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode continu

La mesure du spectre de résonance magnétique sous des excitations laser et micro-onde continues est le protocole le plus simple pour mesurer des grandeurs statiques physiques dans l'environnement du centre NV. Ces grandeurs (champ magnétique, température...) affectent les résonances du spin électronique. La mesure de la modification de ces résonances, via l'acquisition du spectre de résonance magnétique, permet alors d'accéder à l'amplitude de ces grandeurs physiques. Dans cette partie, on va estimer quelle sensibilité peut être atteinte suivant ce protocole de mesure, en se restreignant au cas de la mesure de la température et par extension du champ magnétique.

La mesure du spectre de résonance magnétique s'effectue en enregistrant le niveau de photoluminescence ou taux de comptage  $\mathcal{R}_{\text{cw}}$  du centre NV en fonction de la fréquence du champ micro-onde  $f_{\text{mw}}$  appliquée. Ce taux de comptage peut être décrit par la fonction :

$$\mathcal{R}_{\text{cw}} = \mathcal{R} \left[ 1 - \mathcal{C} \mathcal{F} \left( \frac{f_{\text{mw}} - f_{\text{NV}}}{\Delta\nu} \right) \right] \quad (1.10)$$

avec  $\mathcal{R}$  le taux de comptage du centre NV hors résonance,  $\mathcal{C}$  le contraste,  $\mathcal{F}$  le profil de la raie de résonance avec  $\mathcal{F}(f_{\text{mw}} = f_{\text{NV}}) = 1$ ,  $f_{\text{NV}}$  la fréquence de résonance du centre NV,  $\Delta\nu$  la largeur de raie à mi-hauteur (voir [Figure 1.14](#)).

Le signal  $\mathcal{S}(f_{\text{mw}})$  mesuré lors de l'acquisition du spectre de résonance magnétique correspond au produit du taux de comptage  $\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})$  et de la durée totale d'acquisition  $\Delta t$ ,  $\mathcal{S}(f_{\text{mw}}) = \mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})\Delta t$ . Ce signal est affecté par le bruit de photons suivant une distribution de Poisson. L'écart type est donc  $\sqrt{\mathcal{S}(f_{\text{mw}})} = \sqrt{\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})\Delta t}$ . Une variation de signal  $\delta\mathcal{S}(f_{\text{mw}})$  provoquée par une petite variation  $\delta f$  de la fréquence de résonance de la transition induite par la température est décrite au premier ordre par :

$$\delta\mathcal{S}(f_{\text{mw}}) = \frac{\partial\mathcal{S}(f_{\text{mw}})}{\partial f} \delta f = \frac{\partial\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})}{\partial f} \delta f \Delta t \quad (1.11)$$

Le rapport signal sur bruit  $SNR$  lors de la mesure peut alors s'écrire :

$$SNR = \frac{\frac{\partial\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})}{\partial f}}{\sqrt{\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})\Delta t}} \delta f \Delta t \quad (1.12)$$

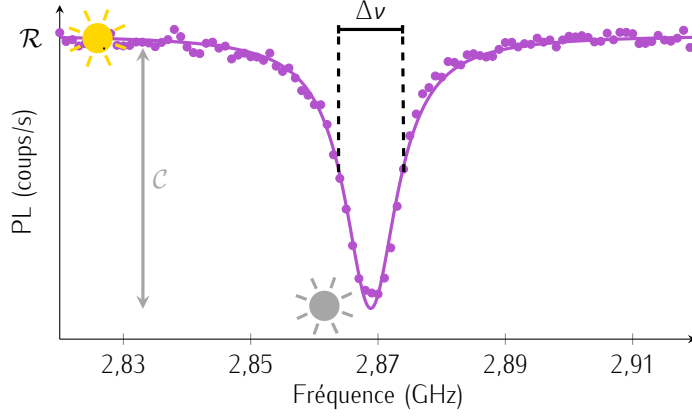


FIGURE 1.14 – Spectre typique de résonance magnétique d'un centre NV. On retrouve le contraste  $\mathcal{C}$ , la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  et le taux de comptage hors résonance  $\mathcal{R}$ .

De cette formule, on peut extraire la variation minimale détectable de la fréquence de résonance de la transition  $\delta f_{\min}$  atteinte pour un signal rapport sur bruit  $SNR$  égal à 1 :

$$\delta f_{\min} = \frac{1}{\frac{\partial \mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})}{\partial f}} \frac{\sqrt{\mathcal{R}_{\text{cw}}}}{\sqrt{\Delta t}} \quad (1.13)$$

De cette expression, on peut déduire la sensibilité thermique  $\eta_{T_{\text{cw}}} = \delta T_{\text{cw}_{\min}} \sqrt{\Delta t}$  où  $\delta T_{\text{cw}_{\min}}$  est la variation minimale de température détectable. Celle-ci peut se définir comme le rapport entre la variation minimale détectable de la fréquence de résonance  $\delta f_{\min}$  et la variation de la fréquence de résonance du centre NV avec la température, soit :

$$\eta_{T_{\text{cw}}} = \frac{\delta f_{\min}}{\frac{\partial f_{\text{NV}}}{\partial T}} \sqrt{\Delta t} \approx \frac{1}{\frac{\partial f_{\text{NV}}}{\partial T}} \frac{\sqrt{\mathcal{R}_{\text{cw}}}}{\max \left| \frac{\partial \mathcal{R}_{\text{cw}}(f)}{\partial f} \right|} \quad (1.14)$$

Afin de simplifier ce résultat, nous considérons que le contraste de la résonance de spin  $\mathcal{C}$  est suffisamment faible pour considérer que  $\sqrt{\mathcal{R}_{\text{cw}}(f_{\text{mw}})} \approx \sqrt{\mathcal{R}}$ . La sensibilité thermique maximale se simplifie alors comme suit :

$$\eta_{T_{\text{cw}}} \approx \frac{\mathcal{P}_{\text{F}}}{\left| \frac{\partial f_{\text{NV}}}{\partial T} \right|} \frac{\Delta\nu}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}}} \quad (1.15)$$

avec  $\mathcal{P}_{\text{F}}$  le paramètre numérique associé au profil de la raie de résonance ( $\mathcal{F}_{\text{Gaussienne}} \approx 0,70$  et  $\mathcal{F}_{\text{Lorentzienne}} \approx 0,77$ ).

On peut de la même manière extraire la sensibilité maximale aux champs magnétiques statiques qui s'exprime comme suit :

$$\eta_{B_{\text{cw}}} \approx \frac{\mathcal{P}_{\text{F}}}{\gamma_{\text{NV}}} \frac{\Delta\nu}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}}} \quad (1.16)$$

avec  $\frac{\partial f_{\text{NV}}}{\partial B} = \gamma_{\text{NV}}$ .

Il apparaît que la sensibilité thermique  $\eta_{T_{cw}}$  dépend de quatre paramètres physiques (voir [Figure 1.14](#)) :

- Le terme d'évolution de la raie de résonance en fonction de la température  $|\frac{\partial f_{NV}}{\partial T}|$
- Le contraste  $\mathcal{C}$  du spectre de résonance magnétique
- Sa largeur de raie  $\Delta\nu$
- Le taux de comptage hors résonance  $\mathcal{R}$

Le terme d'évolution de la raie de résonance en fonction de la fréquence  $|\frac{\partial f_{NV}}{\partial T}|$ , aussi noté  $|\frac{\partial D}{\partial T}|$ , est une propriété intrinsèque du centre NV. Bien que cette valeur dépende de la gamme de température d'opération, elle n'est pas très différente entre les différents centres NV et vaut  $|\frac{\partial D}{\partial T}| \approx 70 \text{ kHz K}^{-1}$  à température ambiante [83].

Le contraste  $\mathcal{C}$  est aussi une propriété intrinsèque au centre NV et ne dépasse pas  $\mathcal{C} \sim 30\%$ . Cependant, il peut être affecté par la puissance du laser d'excitation comme on pourra le voir dans le [Chapitre 2](#).

Le taux de comptage hors résonance  $\mathcal{R}$  est un paramètre sur lequel il est possible de jouer pour améliorer la sensibilité. Ce terme est limité par deux facteurs que sont le taux de transition radiative et l'efficacité de collection des photons émis par le centre NV. En ce qui concerne le premier facteur, en isolant le centre NV dans une microcavité optique possédant un mode optique résonant avec la transition optique du centre NV, on peut réduire le temps de vie de l'état excité et ainsi augmenter le taux de comptage hors résonance  $\mathcal{R}$ . Cet effet est appelé effet Purcell mais ajoute une complexité dans la mise en place du capteur puisqu'il implique le recours à des microcavités optiques [107]. Le second facteur limitant provient de la matrice de diamant de fort indice qui réduit considérablement le nombre de photons collectés. Ce taux de collection peut être amélioré en recourant à des microstructures adaptées comme par exemple des lentilles solides à immersion [108–110] ou encore des piliers jouant le rôle de guides d'ondes optiques [111–113]. Une dernière possibilité consiste à utiliser non pas un centre NV unique mais un ensemble de centres NV. Ceci a pour conséquence d'accroître le taux de comptage  $\mathcal{R}$  proportionnel au nombre de centres NV dans l'ensemble  $N_{NV}$ . Autrement dit la sensibilité est améliorée par un facteur  $\sqrt{N_{NV}}$ . Cette solution n'apporte pas que des avantages puisque bien que le taux de comptage soit augmenté, les interactions spin-spin entre les différents centres NV peuvent détériorer le temps de cohérence.

La largeur de raie  $\Delta\nu$  est intrinsèquement limitée par ce temps de cohérence  $T_2^*$  du centre NV. Sous excitations continues, cette limite n'est cependant pas atteinte. La largeur de raie  $\Delta\nu$  est en effet limitée par l'élargissement induit par les excitations micro-onde et laser et atteint quelques MHz pour un centre NV unique [114].

En reprenant les valeurs typiques des paramètres qui entrent dans la définition de la sensibilité pour un centre NV unique, on obtient des sensibilités en température de quelques  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  et des

sensibilités au champ magnétique de quelques  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Ces valeurs peuvent être améliorées, en recourant à des protocoles d'excitations impulsionnelles, permettant de s'affranchir du phénomène d'élargissement de la raie sous excitations continues.

### 1.4.2 Mesure sous excitations laser et micro-onde en mode impulsionnel

Dans ce protocole de mesure, les excitations micro-onde et laser ne sont plus réalisées de manière continue mais de manière séquentielle et impulsionnelle, afin de découpler l'action du laser de celle du champ micro-onde. On applique alors la séquence d'impulsions suivante. Une première impulsion laser de durée  $T_{\text{laser}} = 300 \text{ ns}$  est utilisée pour initialiser le spin dans l'état  $m_s = 0$ . Cette impulsion laser est suivie par un temps de retard  $T_{\text{retard}} = 1000 \text{ ns}$  pour permettre aux populations piégées dans l'état métastable de relaxer dans l'état fondamental. Ensuite, on applique une impulsion micro-onde de durée  $T_\pi$  pour exciter l'état de spin, avant qu'une deuxième impulsion laser ne soit utilisée pour lire l'état de spin final. Cette séquence est répétée en faisant varier la fréquence de la micro-onde d'excitation et le signal de photoluminescence est enregistré pour chacune de ces fréquences afin d'extraire le spectre de résonance magnétique (voir [Figure 1.9 \(b\)](#)). Si le champ micro-onde est résonant, l'impulsion micro-onde de durée  $T_\pi$  a pour effet de transférer le système de l'état brillant  $m_s = 0$  vers les états sombres  $m_s = \pm 1$  et un niveau bas de fluorescence est observé lors de l'impulsion de lecture.

Dans ce cas, le profil des raies de résonance est le résultat d'une convolution entre les raies naturelles de largeur  $\sim \frac{1}{T_2^*}$  et une fonction sinus-cardinal de largeur  $\sim \frac{1}{T_\pi}$ . En augmentant  $T_\pi$ , c'est-à-dire en diminuant l'intensité du champ micro-onde, on peut ainsi atteindre une largeur  $\Delta\nu$  limitée par le temps de cohérence [114] :

$$\Delta\nu_{\text{min}} = \Gamma_2^* = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\pi T_2^*} \quad (1.17)$$

Dans un diamant massif de concentration naturelle de carbone  $^{13}\text{C}$ , le temps de cohérence  $T_2^*$  est de l'ordre de la microseconde [95]. Ceci donne une largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu_{\text{min}}$  de plusieurs centaines de kHz. On a bien une réduction de la largeur de raie permettant de résoudre la structure hyperfine liée à l'interaction du spin électronique du centre NV avec le spin nucléaire de l'azote (voir [Figure 1.9 \(b\)](#)). Cependant, ce protocole impulsionnel a des contreparties. En effet, l'impulsion laser utilisée dans le protocole de mesure n'est présente que pendant une petite partie de la séquence de mesure totale, ce qui en moyenne sur toute la séquence induit une perte sur le taux de comptage  $\mathcal{R}$ .

Ce protocole de mesure en régime impulsionnel nécessite donc des temps acquisitions plus longs [114]. La sensibilité thermique en régime impulsionnel  $\eta_{T_{\text{pulse}}}$  ou magnétique  $\eta_{B_{\text{pulse}}}$  peut finalement s'écrire :

$$\eta_{T_{\text{pulse}}} = \frac{\mathcal{P}_F}{\left|\frac{dD}{dT}\right|} \frac{\Delta\nu_{\text{min}}}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}_{\text{pulse}}}} \quad (1.18)$$

$$\eta_{B_{\text{pulse}}} = \frac{\mathcal{P}_F}{\gamma_{\text{NV}}} \frac{\Delta\nu_{\text{min}}}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}_{\text{pulse}}}} \quad (1.19)$$

avec  $\mathcal{P}_F = 0,70$  correspondant au profil gaussien,  $\mathcal{R}_{\text{pulse}} = \frac{\mathcal{R}T_{\text{laser}}}{T_{\text{séquence}}}$ ,  $T_{\text{laser}} = 300$  ns la durée de l'impulsion laser,  $T_{\text{séquence}} = T_{\text{laser}} + T_{\pi} + T_{\text{retard}}$  la durée totale de la séquence qui comprend les durées des impulsions laser  $T_{\text{laser}}$  et micro-onde  $T_{\pi}$  ainsi que le temps d'attente  $T_{\text{retard}} = 1000$  ns entre les deux impulsions laser et micro-onde.

Dans ce protocole impulsionnel, on trouve que la sensibilité est directement inversement proportionnelle au temps de cohérence  $T_2^*$ . Le bénéfice d'un tel protocole est notamment significatif pour des centres NV dans du diamant massif isotopiquement purifié, dans lequel ce temps peut atteindre 500  $\mu\text{s}$  à température ambiante [96]. Les sensibilités au champ magnétique peuvent ainsi atteindre des valeurs d'environ 40 nT/ $\sqrt{\text{Hz}}$ . Outre recourir à une excitation impulsionnelle, notons que les sensibilités thermique et magnétique peuvent être encore améliorées par le biais des techniques de découplage dynamique. On peut ici mentionner les travaux sur l'augmentation de la sensibilité à un champ magnétique oscillant [115, 116], ou bien les protocoles Thermal Echo (TE) ou encore Thermal Carr–Purcell–Meiboom–Gill (TCPMG) pour accroître la sensibilité à la température [117, 118].

## 1.5 Le magnétomètre NV à balayage

Deux principales architectures sont aujourd'hui employées pour réaliser des imageurs à centre NV du diamant. Une première est l'imagerie en champ large qui s'appuie sur des ensembles de défauts isolés dans un substrat sur lequel repose l'échantillon à sonder ou bien sur des dispersions de défauts en nanodiamants déposés sur l'échantillon d'intérêt [119–126]. Une seconde est l'imagerie à balayage : le centre NV est alors isolé à l'extrémité d'une pointe de microscope à force atomique (AFM) balayée au-dessus de l'échantillon sondé. Cette seconde architecture recourt à des défauts au sein de nanodiamants fixés en bout de pointe AFM conventionnelle ou bien au sein de pointes en diamant fixées sur des dispositifs AFM. Dans cette partie, je décris plus en détail cette seconde configuration à des fins d'imagerie du champ magnétique de fuite produit par l'échantillon magnétique d'intérêt. Dans un premier temps, je vais détailler le dispositif expérimental. Dans un second temps, les différents protocoles d'imagerie de champ magnétique développés seront introduits.

### 1.5.1 Principe de fonctionnement

Le principe de fonctionnement du magnétomètre NV à balayage est schématisé sur la [figure 1.15](#) (a) et se base sur la proposition de B. Chernobrod et G. Berman [41]. Un objectif de microscope permet de focaliser le faisceau laser vert sur un centre NV unique implanté à l'extrémité d'une pointe de microscope à force atomique et de collecter le signal de photoluminescence émise par le défaut. L'échantillon magnétique, intégrant souvent une ligne en or lithographiée jouant le rôle d'antenne micro-onde, est alors positionné en dessous de la pointe en diamant puis balayé dans le but de réaliser des cartes de champ magnétique. En effet, en chaque point, le spectre de résonance magnétique est enregistré afin d'extraire le décalage Zeeman et ainsi déterminer l'amplitude  $B_{NV}$  de la composante du champ magnétique le long de l'axe de quantification du centre NV. L'avantage de ce type de magnétomètre repose sur le faible volume de détection du centre NV qui correspond à la fonction d'onde de son spin électronique, soit quelques Ångström. Cette résolution spatiale bien que théorique est en pratique limitée par la distance entre le centre NV et la surface de l'échantillon ( $d_{NV}$ ). Cette distance va, d'une part, contraindre la résolution spatiale du magnétomètre et, d'autre part, limiter la capacité à caractériser certains matériaux magnétiques qui produisent des champs de fuite trop faibles.

Initialement, cette méthode s'est appuyée sur des pointes de microscope à force atomique au bout desquelles un nanodiamant hébergeant un centre NV était attaché [45, 46]. Cette configuration a permis d'imager des structures magnétiques en nickel [45], puis son potentiel s'est ensuite illustré au travers de l'imagerie de vortex magnétiques [127, 128] et de parois de domaines dans des lignes ferromagnétiques [129–131]. Bien que cette configuration semble fonctionnelle, il en ressort deux problèmes. D'abord, l'émission du centre NV s'effectue dans toutes les directions de l'espace, ce qui affecte l'efficacité de collection du signal de photoluminescence par l'objectif de microscope et donc la sensibilité de la mesure. De plus, il est difficile de contrôler la position du nanodiamant à l'extrémité de la pointe et de ce fait, la distance du centre NV à la surface de l'échantillon est de l'ordre de  $\sim 100$  nm, limitant ainsi la résolution spatiale.

Pour améliorer le capteur, les pointes de microscopie à force atomique ont été remplacées par des pointes en diamant hébergeant un centre NV unique à son extrémité directement implanté par implantation ionique. Pour cela, les pointes en diamant sont taillées à partir d'un diamant massif [34, 132]. Elles reposent sur un cantilever en diamant fixé sur le dispositif AFM. Elles ont une forme de pilier de longueur typique  $\sim 1$   $\mu$ m et de diamètre environ 200 nm. Elles peuvent aussi avoir une forme conique dans le but d'optimiser la collection [34, 111–113] et ainsi améliorer la sensibilité. Il est, de plus, possible de contrôler la distance du centre NV du bout de la pointe en diamant en ajustant l'énergie d'implantation [133]. Cette implantation permet de contrôler la distance du centre NV à la surface de l'échantillon ( $d_{NV}$ ) qui est généralement de l'ordre de  $\sim 50$  nm. Les pointes en



diamant utilisées par la suite dans ce travail de thèse ont été développées par l'entreprise *QNAMI*. Une image au microscope électronique d'une de ces pointes est montrée sur la [figure 1.15 \(c\)](#) et une carte typique de la photoluminescence montre l'émission du centre NV isolé dans la pointe en diamant sur la [figure 1.15 \(d\)](#).

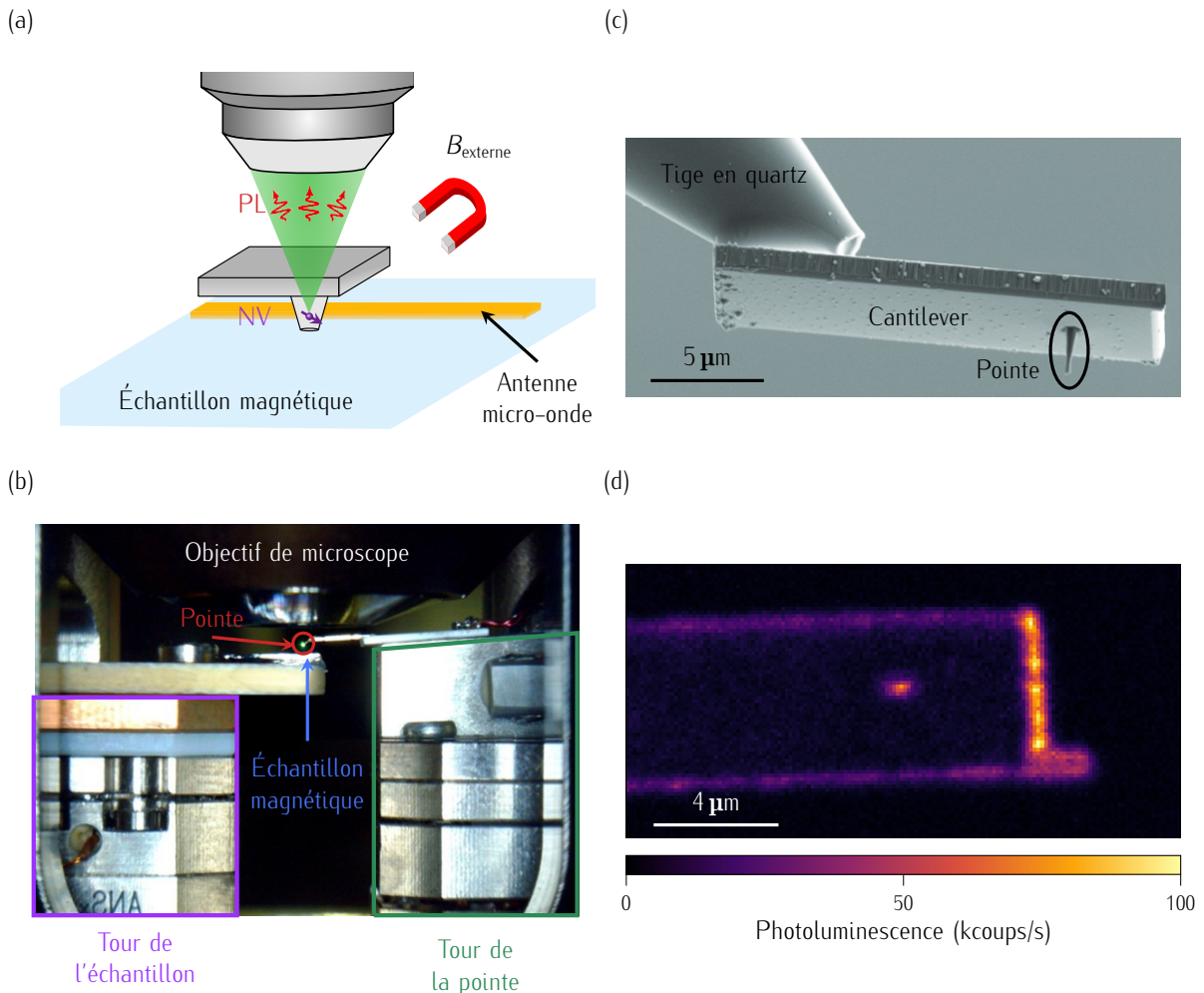


FIGURE 1.15 – (a) Schéma du principe de fonctionnement du magnétomètre NV à balayage. Le centre NV est disposé à l'extrémité de la pointe de microscopie à force atomique. L'échantillon magnétique est disposé en dessous et très proche de la pointe tandis que l'antenne micro-onde, usuellement lithographiée sur l'échantillon sondé, permet d'enregistrer le spectre de résonance magnétique à chaque pixel et donc d'imager le champ magnétique de fuite. (b) L'échantillon et la pointe sont tous deux disposés sur des tours composées de trois scanners X, Y et Z ainsi que des positionneurs X, Y et Z (avec X, Y et Z le référentiel du laboratoire). (c) Image de microscopie électronique d'une pointe en diamant optimisée pour la mesure du champ magnétique et fabriquée par l'entreprise *QNAMI* (image extraite de <https://qnami.ch>). (d) Carte de photoluminescence d'une pointe en diamant montrant l'émission d'un centre NV au centre de l'image.

Pendant ma thèse, j'ai employé le magnétomètre NV à balayage construit par les anciens doctorants de l'équipe [86, 134] (voir [Figure 1.15 \(b\)](#)). Les détails techniques de ce dispositif sont décrits dans

[l'Annexe A](#). La sensibilité aux champs magnétiques est de l'ordre de  $\eta_{B_{cw}} \sim \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  sous excitations micro-onde et laser continues. La résolution spatiale est, quant à elle, limitée par la distance entre le centre NV et la surface de l'échantillon ( $d_{\text{NV}}$ , en moyenne de  $\sim 50$  nm).

## 1.5.2 Modes d'imagerie du champ magnétique

Le magnétomètre NV à balayage peut opérer suivant plusieurs modes d'imagerie présentant chacun des avantages et des inconvénients. Par la suite, je vais discuter du mode d'imagerie quantitatif (*Full-B*) et du mode qualitatif (*Dual iso-B*). Pour conserver la possibilité de mesurer des variations de champ de signe opposé, on utilise un champ magnétique externe aligné avec l'axe de quantification du centre NV pour séparer les deux raies de résonance  $f_-$  et  $f_+$  (voir [Figure 1.16](#) (a)).

### Mode d'imagerie quantitative (*Full-B*)

Le mode d'imagerie *Full-B* permet de réaliser une cartographie quantitative du champ magnétique à l'échelle nanométrique. Dans ce mode, on enregistre le spectre de résonance autour d'une des deux raies de résonance. L'analyse de la position de la raie de résonance permet d'extraire la composante du champ magnétique le long de l'axe du centre NV. Cependant, cette approximation est vraie tant que l'effet Zeeman est dans le régime linéaire, autrement dit, tant que la composante perpendiculaire du champ magnétique n'excède pas une valeur estimée à 5 mT (voir [Paragraphe 1.2.2](#)). Au-delà de cette valeur et jusqu'à des valeurs du champ d'environ 20 mT, la mesure complète du spectre de résonance, c'est-à-dire des deux raies de résonance, est nécessaire afin de rester quantitative. Ce mode d'imagerie permet d'extraire la valeur du champ magnétique à chaque pixel mais au prix d'une durée de cartographie longue (souvent plusieurs heures). Pour des valeurs de  $B_{\perp}$  au-delà de 20 mT, le contraste de la résonance magnétique devient trop faible pour employer ce mode d'imagerie.

### Mode d'imagerie qualitatif (*Dual iso-B*)

Dans ce mode d'imagerie qualitatif (*Dual iso-B*), on enregistre à chaque pixel, le signal obtenu pour deux fréquences  $f_1$  et  $f_2$  distinctes fixées bien choisies (voir [Figure 1.16](#) (b)). On note  $\mathcal{S}(f_1)$  et  $\mathcal{S}(f_2)$  les signaux de photoluminescence associés à ces deux fréquences respectivement. Ces deux fréquences sont généralement choisies à l'endroit de la raie de résonance où la pente est maximale. On réalise alors une cartographie du signal  $\Delta\mathcal{S}$  qui correspond à la différence entre le signal obtenu à la fréquence  $f_1$  et le signal obtenu à la fréquence  $f_2$  soit  $\Delta\mathcal{S} = \mathcal{S}(f_2) - \mathcal{S}(f_1)$ . Considérons alors la situation où ces deux fréquences sont choisies sur la raie de résonance à haute fréquence. Si la contribution de la composante du champ magnétique de fuite le long de l'axe de quantification du centre NV est positive, la raie de résonance se décale vers les hautes fréquences (voir [Figure 1.16](#) (b))

et le signe de  $\Delta\mathcal{S}$  devient alors négatif. À l'inverse, si la composante du champ magnétique le long de l'axe de quantification du centre NV est négative, la raie de résonance se décale vers les basses fréquences et  $\Delta\mathcal{S} > 0$ . Bien que non quantitatif, ce mode d'imagerie ne nécessite pas un long temps d'acquisition et permet de détecter rapidement les zones magnétiques d'intérêt.

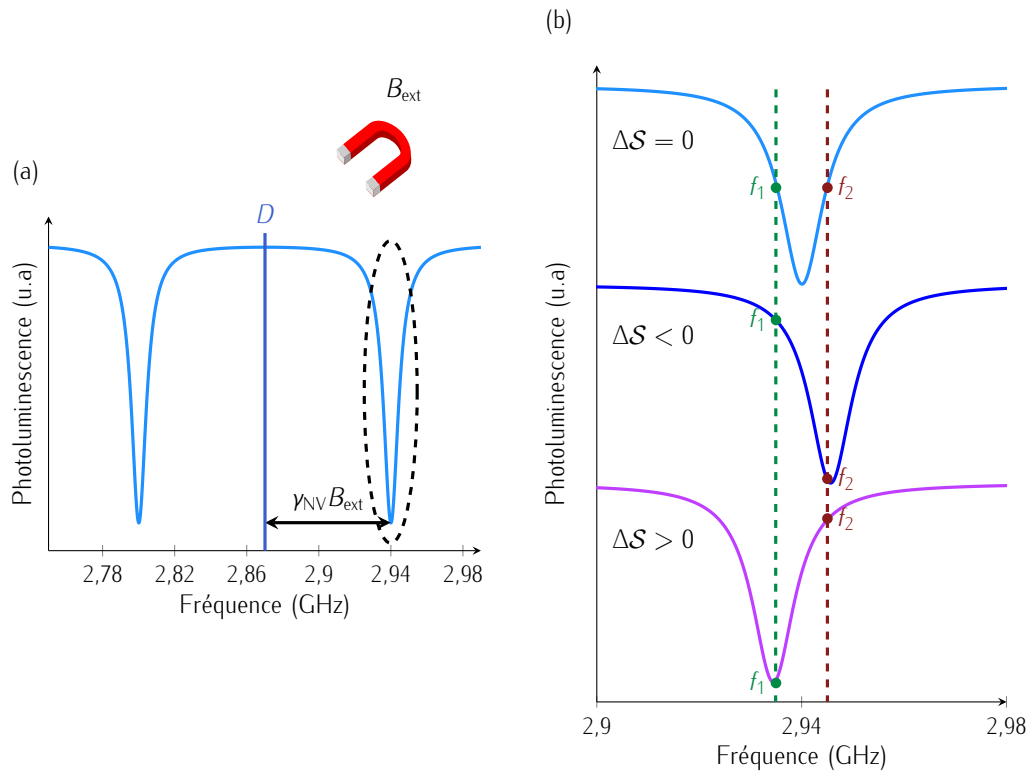


FIGURE 1.16 – (a) Spectre de résonance magnétique calculé pour un champ magnétique le long de l'axe de quantification du centre NV avec une amplitude  $B_{NV}$  de 2,5 mT. Les fréquences de résonance  $f_-$  et  $f_+$  sont séparées par l'effet Zeeman. (b) Représentation schématique de la lecture qualitative du champ magnétique en mode *Dual iso-B*. Ce mode repose sur la mesure de la photoluminescence à deux fréquences différentes  $f_1$  et  $f_2$ . On note  $\mathcal{S}(f_1)$  et  $\mathcal{S}(f_2)$  le signal de photoluminescence obtenu à ces deux fréquences  $f_1$  et  $f_2$  respectivement. On définit  $\Delta\mathcal{S} = \mathcal{S}(f_2) - \mathcal{S}(f_1)$ , grandeur reliée à l'évolution du champ magnétique.

## Conclusion

Dans ce chapitre, plusieurs volets ont été abordés. D'abord, j'ai introduit l'élément au cœur du capteur quantique étudié dans le cadre de ces travaux : le centre NV dans le diamant ainsi que ses propriétés optiques et électroniques. À ce défaut est associé un spin électronique dont le niveau fondamental est un triplet de spin avec un état singulet  $m_s = 0$  et un état doublet  $m_s = \pm 1$  dégénéré en absence de champ magnétique externe. Ce défaut présente, entre autres, deux propriétés ici d'intérêt : (i) la capacité de polariser son spin électronique dans l'état  $m_s = 0$  par simple pompage

optique et (ii) un taux de photoluminescence dépendant de l'état de spin. Ces deux propriétés permettent, par le biais d'une excitation micro-onde et optique, la mesure optique du spectre de résonance magnétique. Cette mesure du spectre de résonance magnétique permet notamment d'accéder à des grandeurs physiques statiques qui affectent les fréquences de résonance magnétique. Ces fréquences dépendent de la température, en affectant la valeur du terme de clivage axial  $D$  de l'état fondamental du centre NV. Elles dépendent aussi du champ magnétique et du champ électrique par les effets Zeeman et Stark respectivement.

Par la suite, j'ai introduit les propriétés dynamiques du spin électronique du centre NV et notamment ses temps caractéristiques ainsi que les protocoles de mesure associés. Certains de ces temps caractéristiques affectent la sensibilité du spin électronique. Trois temps caractéristiques ont été considérés : d'une part le temps de relaxation longitudinal  $T_1$  associé au couplage du spin électronique du centre NV avec les modes de phonons de la matrice de diamant et, d'autre part, les temps de cohérences  $T_2^*$  et  $T_2$  associés au couplage du spin électronique du centre NV avec les impuretés paramagnétiques dans son environnement.

La sensibilité ultime du capteur en température et champ magnétique a ensuite été analysée. Les paramètres qui la déterminent ont été introduits, en particulier le taux de comptage des photons émis, le contraste et la largeur de la raie de résonance magnétique. Cette sensibilité a été définie dans deux configurations expérimentales : sous des excitations laser et micro-onde continues puis impulsionnelles. L'excitation en mode continu permet une mesure rapide du spectre de résonance magnétique mais la sensibilité est limitée par l'élargissement de largeur de raie de résonance. Cette limitation peut être dépassée en utilisant des excitations laser et micro-onde impulsionnelles.

Pour finir, j'ai introduit le principe de fonctionnement du magnétomètre NV à balayage ainsi que deux de ses modes d'imagerie. Dans ce microscope à force atomique, la pointe en diamant avec à son extrémité, un centre NV, est balayée au-dessus de l'échantillon magnétique à sonder. Cet imageur se distingue par plusieurs caractéristiques de fort intérêt :

- La sensibilité au champ magnétique (sous des excitations laser et micro-onde continues) atteint le  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ .
- La résolution spatiale est d'environ  $\sim 50$  nm.
- La mesure du champ magnétique peut être quantitative, permettant de reconstruire le champ magnétique vectoriel  $\mathbf{B}$ .
- La mesure est non perturbative.
- Ce dispositif fonctionne à température et pression ambiante.

À ce jour, les microscopes à centre NV sont principalement employés pour l'imagerie du champ magnétique notamment pour l'étude de matériaux produisant peu de champ de fuite [47-59]. Or, le

spin du centre NV est pourtant aussi sensible au bruit magnétique, au champ électrique et à la température. Si quelques travaux ont déjà employé le centre NV pour sonder le bruit magnétique, son utilisation pour imager la température et le champ électrique reste moindre voire encore à ses débuts. L'objectif de ces travaux de thèse est d'étendre les modalités d'imagerie d'un tel microscope NV à balayage vers l'imagerie de la température (voir [Chapitre 2](#)), du bruit magnétique (voir [Chapitre 3](#)) et du champ électrique (voir [Chapitre 4](#)). Ceci permettrait de disposer d'un microscope polyvalent capable d'imager, sur un même dispositif, diverses grandeurs physiques (champ ou bruit magnétique, champ électrique et température) et d'étudier leurs couplages.

# LE CENTRE NV : UN THERMOMÈTRE À L'ÉCHELLE NANOMÉTRIQUE

---

<b>2.1 Pointe en diamant optimisée pour l'imagerie thermique à balayage</b>	<b>43</b>
2.1.1 L'architecture de l'imageur de température	43
2.1.2 Sensibilité en température de la pointe en diamant optimisée	46
2.1.3 Résolution spatiale de la pointe en diamant optimisée	58
<b>2.2 Nanosources de chaleur formées par des structures thermoplasmoniques</b>	<b>58</b>
2.2.1 Propriétés des structures thermoplasmoniques	59
2.2.2 Configurations d'excitation optique des structures thermoplasmoniques	63
2.2.3 Analyse des structures thermoplasmoniques de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$	65
2.2.4 Origine de l'effet de chauffage du capteur de température	72
<b>2.3 Nanosources de chaleur formées par des constriction dans une ligne d'or</b>	<b>74</b>
2.3.1 Propriétés thermiques des constriction dans des lignes de courant en or	74
2.3.2 Protocole de mesure simultané de la température et du champ magnétique	76
2.3.3 Cartographie du champ magnétique et de la température avec un centre NV unique	82
2.3.4 Stratégies possibles pour s'affranchir de l'effet de la composante perpendiculaire du champ magnétique	87
<b>2.4 Nanosources de chaleur formées par des lignes de courant de dimensions nanométriques</b>	<b>89</b>
2.4.1 Nanosources de chaleur formées par des lignes métalliques de dimension nanométrique	89
2.4.2 Nanosources de chaleur formées par des lignes semi-conductrices de dimension nanométrique	91
<b>Conclusion</b>	<b>97</b>

Les développements de plus en plus poussés dans le domaine des nanosciences et nanotechnologies demandent des outils de mesure de plus en plus performants, notamment en termes de résolution spatiale, afin de sonder différentes grandeurs physiques aux échelles nanométriques. La mesure de la température ne fait pas exception. La mesure sensible de la température aux nano-échelles est en effet devenue un enjeu dans plusieurs domaines comme la nanoélectronique [135, 136], la nanophotonique, la nanooptoelectronique, la nanobiologie [137], l'ingénierie des matériaux ou même encore en nanochimie [138].

En nanoélectronique, la course à la miniaturisation des composants électroniques a projeté la technologie des transistors vers des tailles limites d'environ 5 nm [139] et il devient alors limitant de ne pas pouvoir sonder les effets de chauffage dans les transistors nanométriques à l'échelle individuelle [140, 141]. En effet, l'étude de ces échauffements locaux appelés points chauds [142] est essentielle puisqu'ils peuvent induire une limitation dans les performances et la fiabilité ou même une destruction des composants [143, 144]. La détection de ces points chauds peut d'une part permettre d'isoler les transistors défectueux ou même de détecter des fragilités si ces échauffements sont communs à tous les transistors. Dans ce cas, une compréhension des sources et de la dissipation de chaleur dans ces systèmes est essentielle pour identifier des stratégies permettant de s'affranchir de ces échauffements locaux et ainsi, assurer une meilleure fiabilité et performance des dispositifs électroniques. Pour cette mesure, un capteur de température possédant une résolution spatiale inférieure à 100 nm ainsi qu'une sensibilité thermique  $\eta_T$  de l'ordre du  $K/\sqrt{\text{Hz}}$  est nécessaire [140].

Dans le domaine de la nanobiologie, l'étude des processus thermiques à l'échelle de la cellule individuelle et même intra-cellulaire [145] est devenue un enjeu suivant principalement deux champs d'application. D'abord, la température joue un rôle important dans des processus biologiques comme la division ou la mort cellulaire [146] mais aussi durant l'activité des protéines [147, 148] ou l'expression génétique [149-153]. La mesure des fluctuations de température à l'intérieur de la cellule [154, 155] pourrait alors offrir un moyen d'accroître les connaissances sur ces divers phénomènes biologiques. D'autre part, la mesure de la température à l'échelle nanométrique peut offrir un moyen pour le diagnostic voire le traitement thérapeutique. En effet, les cellules cancéreuses ont un métabolisme plus élevé que les autres cellules et génèrent donc plus de chaleur [156]. Ceci permet d'envisager d'identifier la présence de cellules cancéreuses par la chaleur qu'elles émettent, pour ensuite détecter et surveiller l'évolution de certains cancers. La mesure de la température pourrait aussi s'avérer utile pour quantifier les effets du traitement par hyperthermie de tumeurs, traitement qui utilise la chaleur pour détruire les cellules cancéreuses [157-159]. On peut citer, par exemple, la thérapie photothermique qui utilise une nanoparticule qui produit un échauffement local et ciblé important et suffisant pour détruire la cellule malade. Par cette technique, on peut alors, par ciblage et dissociation des cellules, détruire uniquement les cellules malades sans endommager les cellules saines [160-164]. Pour cet enjeu en nanobiologie, il est alors nécessaire d'avoir un capteur de température biocompatible,

non invasif et fonctionnant à température ambiante. De plus, la sensibilité nécessaire doit s'étendre du  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour les échauffements extrinsèques (dit exogènes) de la cellule jusqu'à la dizaine de  $\mu\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour les échauffements intrinsèques (dit endogènes) [137].

Citons comme dernier exemple le domaine de l'ingénierie des matériaux. La connaissance des mécanismes de dissipation de la chaleur et de leur efficacité dans certains matériaux est essentielle pour assurer la gestion thermique dans les composants aux nano-échelles. Le contrôle des effets de chauffage peut s'appuyer sur le recours à des matériaux émergents de grande conductivité thermique [165] ou à une nanostructuration des matériaux permettant un contrôle de leurs propriétés thermiques [166]. La nanostructuration des matériaux peut en outre ouvrir des opportunités pour l'amélioration des performances des matériaux thermoélectriques, matériaux qui convertissent la chaleur en courant électrique [140, 167]. Le capteur de température doit alors répondre à certains critères. Il doit être capable d'atteindre des résolutions spatiales inférieures à 100 nm et une sensibilité thermique  $\eta_T$  de l'ordre du  $\text{mK}/\sqrt{\text{Hz}}$ , tout en fonctionnant à température ambiante et sur une large plage de température.

Depuis maintenant plusieurs dizaines d'années, les scientifiques se sont penchés sur le développement de capteurs de température qui répondent à ces critères [135, 168, 169] : sensibilité sub- $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$ , résolution spatiale sub-100 nm, caractère non-perturbatif et quantitatif, opération en conditions ambiantes dans divers milieux à la fois liquide et solide.

Une première classe de capteur exploite les propriétés fluorescentes dépendantes de la température de divers nano-émetteurs [170, 171]. Il peut s'agir de boîtes quantiques [172, 173], d'ions terre rare [174, 175], de protéines [145], de polymères [155] ou encore de nanogels [154]. La mesure de la température est alors possible au travers de la variation des temps de vie radiatifs [155], de l'intensité de la fluorescence [176], du spectre d'émission [177] ou du spectre Raman [178-180] en fonction de la température. Les performances de ces techniques, bien que pratiques et non invasives, peuvent cependant être limitées par de nombreux artefacts induits par plusieurs paramètres de l'environnement d'étude comme par exemple, le pH, la concentration d'ions, la viscosité, les variations d'indice optique du milieu [155, 181, 182]. De plus, certains de ces émetteurs souffrent de clignotement ou même de blanchiment de leur fluorescence [183]. Enfin, les sensibilités atteintes sont usuellement de l'ordre du  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  seulement, et ce sur des plages de température réduites [168, 184-186].

Une seconde catégorie de techniques s'appuie sur des mesures optiques ou électriques à partir de pointes dans des dispositifs à balayage. On peut citer la microscope optique en champ proche (SNOM) qui utilise une pointe pour exalter le signal Raman [187, 188], pour accroître l'intensité de fluorescence de nano-émetteurs [135] ou pour diffuser le champ proche thermique infrarouge [189]. Bien que dans ces techniques la résolution spatiale puisse atteindre quelques dizaines de nm, les sensibilités restent encore modestes, autour du  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  et les performances optimales sont parfois atteintes dans des environnements contraignants (ultravide voire cryogénique) [168]. Une deuxième



gamme de technique se base sur la combinaison de thermomètres de taille nanométrique couplés avec un microscope à force atomique [174]. Ce moyen permet notamment d'améliorer la résolution spatiale puisqu'elle va directement être liée à la taille du thermomètre au bout de la pointe. On peut donner comme exemple la microscopie thermique à balayage (S<sub>Th</sub>M) [190-194] qui peut atteindre des sensibilités de l'ordre de  $100 \text{ mK}/\sqrt{\text{Hz}}$  et des résolutions spatiales allant de 10 nm à 100 nm. Cependant, le contact direct de la pointe avec la source de chaleur rend cette méthode invasive et difficilement quantitative de par la grande complexité des échanges de température entre la sonde et l'échantillon sondé [190, 193]. À ce jour, la technique qui détient les meilleures performances reste le dispositif d'interférence quantique supraconducteur (SQUID) couplé à une pointe. Elle permet d'avoir une résolution spatiale de l'ordre de 50 nm avec une sensibilité thermique pouvant atteindre quelques dizaines de  $\mu\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  [23, 24]. Cependant, cette technique nécessite de se trouver autour de la température critique du matériau supraconducteur donc dans une gamme de température très faible (quelques K) dans des conditions expérimentales cryogéniques.

Une dernière stratégie explorée utilise le centre NV dans le diamant pour réaliser un capteur de température. C'est l'approche que nous poursuivons ici, afin de réaliser un imageur thermique. La température peut alors être lue directement sur le spectre de résonance magnétique via la variation de la résonance  $D$  de l'état fondamental du spin électronique avec la température [83]. Ces thermomètres à centres NV présentent plusieurs atouts. Ils sont fonctionnels sur une large plage allant de 5 K jusqu'à 600 K [84, 85] voir au-delà [195]. De plus, le centre NV est photostable à température ambiante et robuste au clignotement et au blanchiment [26, 196]. Les capteurs à centres NV sont en sus biocompatibles et très peu sensibles au pH ou à la concentration d'ions [197-199]. Par ailleurs, il est possible de fabriquer des nanodiamants composés de centres NV pouvant atteindre des tailles limites de 5 nm [200] permettant, de fait, d'atteindre a priori des résolutions spatiales nanométriques. La mesure de la température par le biais du centre NV a déjà été utilisée pour mesurer des échauffements induits par une ligne conductrice [118] ou une antenne micro-onde [201] mais surtout dans le domaine de la biologie par le biais de nanodiamants contenant un ou plusieurs centres NV et incorporés dans les systèmes biologiques [29, 199, 202-205]. On peut aussi discuter ici d'une autre stratégie hybride, recourant au centre NV du diamant. Elle consiste à lire la température d'une nanoparticule ferromagnétique proche de sa température de Curie, particule placée à proximité du centre NV [206, 207]. Dans une gamme de température proche de la température de Curie, l'aimantation de la nanoparticule varie fortement et il en est de même pour le champ de fuite qu'elle génère. Ce champ magnétique dépendant de la température est ensuite lu par le centre NV et on peut ainsi indirectement remonter à la température en utilisant le centre NV comme nano-magnétomètre. Ce capteur hybride bien que pouvant atteindre des sensibilités thermiques de  $76 \mu\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  [208] n'est cependant fonctionnel qu'autour de la température de Curie de la particule magnétique et donc sur une faible plage de température. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous n'adopterons pas cette

approche hybride. La température sera lue à partir de la dépendance en température du terme de clivage axial  $D$ . Indiquons, d'autre part, que la plupart des expériences précédemment citées recourent au centre NV en tant que capteur. Notre objectif est d'étendre ses fonctionnalités à l'imagerie.

Dans ce chapitre, je vais introduire ce nouveau imageur de température à base de centres NV conçu pendant la thèse de Rana Tanos [209]. Je vais ensuite réaliser une caractérisation des performances de l'imageur : tout d'abord sa sensibilité thermique (voir [Partie 2.1](#)) puis dans un second temps, au travers de plusieurs géométries, tenter de déterminer sa résolution spatiale (voir [Partie 2.2](#), [Partie 2.3](#) et [Partie 2.4](#)).

## 2.1 Pointe en diamant optimisée pour l'imagerie thermique à balayage

Dans cette partie, je vais présenter un tout nouveau capteur se basant sur l'utilisation d'un ensemble de centres NV pour l'imagerie thermique à balayage. Après avoir décrit l'architecture du capteur, je vais évaluer ses performances, notamment sa sensibilité en température en régime d'excitation continue puis impulsionnelle.

### 2.1.1 L'architecture de l'imageur de température

La fréquence de résonance du spin électronique associé au centre NV dépend de la température comme expliqué dans le [Chapitre 1](#). Pour réaliser un imageur thermique à partir de ce spin électronique, plusieurs approches sont possibles. On peut le faire au travers de configurations en champ large ou microscopie confocale [125, 210–212] ou par des configurations à balayage en attachant des nanodiamants au bout d'une pointe de microscope à force atomique [213, 214]. Ces architectures sont complémentaires et chacune d'entre elles possède des avantages et des inconvénients.

Pour l'imagerie en champ large, deux configurations sont possibles : des centres NV dans du diamant massif sur lequel repose l'échantillon d'intérêt et des centres NV dans des nanodiamants dispersés sur ou au sein de l'échantillon sondé [125, 210–212]. La configuration recourant au diamant massif pourrait sembler favorable du fait que les temps de cohérence  $T_2^*$  des centres NV sont plus longs dans le diamant massif que dans les nanodiamants, allant jusqu'à plusieurs  $\mu\text{s}$  [95]. Ces longs temps de cohérence, qui fixent la sensibilité ultime du capteur, laissent présager de sensibilités pouvant atteindre  $0,01 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$  [29, 117, 118]. Cependant, la forte conductivité thermique du diamant exclut une telle architecture pour réaliser un imageur, le diamant dissipant efficacement la chaleur produite localement par l'échantillon sondé [215]. Pour contrer cela, il est possible de réaliser des

nanostructures en réduisant le volume de diamant, ce qui permet de limiter ces effets de dissipation de la chaleur. Une première solution est de déposer des nanodiamants sur l'échantillon. Dans ce cas, la température mesurée est exactement la température locale de la source de chaleur sondée [215]. Cependant, par cette technique d'imagerie en champ large, la résolution spatiale est limitée par la diffraction.

La seconde solution permet d'améliorer la résolution spatiale en accrochant un nanodiamant au bout d'une pointe de microscope à force atomique ou fibre optique. Dans ce cas, la résolution spatiale n'est plus limitée par la diffraction mais par la taille du nanodiamant. Cependant, cela a un prix car plus le nanodiamant est petit, plus les centres NV dans le diamant sont proches de la surface, entraînant une diminution du temps de cohérence  $T_2^*$  [200, 216–218]. La diminution de ce temps caractéristique se traduit par une perte sur la sensibilité, usuellement de l'ordre de  $0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$  à quelques  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$  suivant les protocoles de mesures [219].

L'augmentation du temps de cohérence du centre NV peut se faire en isolant les centres NV dans une nanopointe en diamant. Cette configuration, après optimisation de la géométrie de la pointe, laisse entrevoir de fortes sensibilités (de l'ordre de quelques  $0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ ), tout en offrant une bonne résolution spatiale (inférieure à la centaine de nm). Pour atteindre de telles performances, il faut satisfaire plusieurs contraintes. Ces contraintes sont très différentes de celles optimisant les performances pour l'imagerie magnétique à balayage. En magnéto-métrie NV, la résolution spatiale est déterminée par la distance de vol entre le centre NV et la surface de l'échantillon sondé, requérant d'implanter les défauts à l'apex de la pointe en diamant. En revanche, en imagerie thermique, cette condition n'est plus nécessaire. En effet, la résolution spatiale est alors déterminée par l'extension du point de contact entre la pointe et l'échantillon. Pour obtenir une bonne résolution spatiale, le diamètre de la pointe à son apex doit de fait être réduit. Par conduction, il y a alors thermalisation de la pointe avec l'échantillon grâce à la très grande conductivité thermique du diamant. Il faut toutefois que la pointe en diamant soit de faible volume et isolée thermiquement de son cantilever pour assurer une bonne thermalisation sans fort gradient de température dans la pointe. Dans ce cas, il n'est plus nécessaire de localiser les centres NV à l'apex et on peut les déporter loin de l'extrémité de la pointe et les éloigner des surfaces, ce qui permet de garantir des longs temps de cohérence. Concernant la sensibilité, en magnéto-métrie, il est plus favorable d'isoler un centre NV unique. En effet, les centres NV sont sensibles à la projection du champ magnétique le long de l'axe du centre NV. Or les centres NVs existent selon 4 orientations possibles dans le diamant, avec une projection du champ magnétique différente pour les quatre orientations, rendant plus difficile toute mesure précise du champ magnétique avec des ensembles de centres NV sans orientation préférentielle. Dans le cas de la mesure de la température, l'information est extraite du terme de clivage axial  $D$ , avec une dépendance en température identique quelle que soit l'orientation du centre NV. Il devient donc possible, pour l'imagerie thermique, de recourir à des ensembles de centres NV. Ceci a pour

effet d'accroître le nombre de photons collectés et ainsi d'améliorer la sensibilité en température. Le nombre de photons collectés peut en sus être exalté, en optimisant la géométrie de la pointe suivant une forme conique. Cette optimisation de la géométrie des pointes pour l'imagerie thermique a été réalisée pendant la thèse de R. Tanos avec la collaboration de l'entreprise *QNAMI* [209]. Un schéma de la pointe optimisée est présenté sur la [figure 2.1](#) (a)–(b). On y voit la pointe en diamant hébergeant une dizaine de centres NV délocalisés loin de l'apex, à une distance d'environ 200 nm. La pointe, de forme conique, est soutenue par un cantilever en diamant de faible volume, maintenu à un support réalisant une barrière thermique. On peut voir une image optique de ce nouveau type de pointe en diamant (voir [Figure 2.1](#) (c)) ainsi que la cartographie typique de photoluminescence montrant l'émission de l'ensemble de centres NV (voir [Figure 2.1](#) (d)).

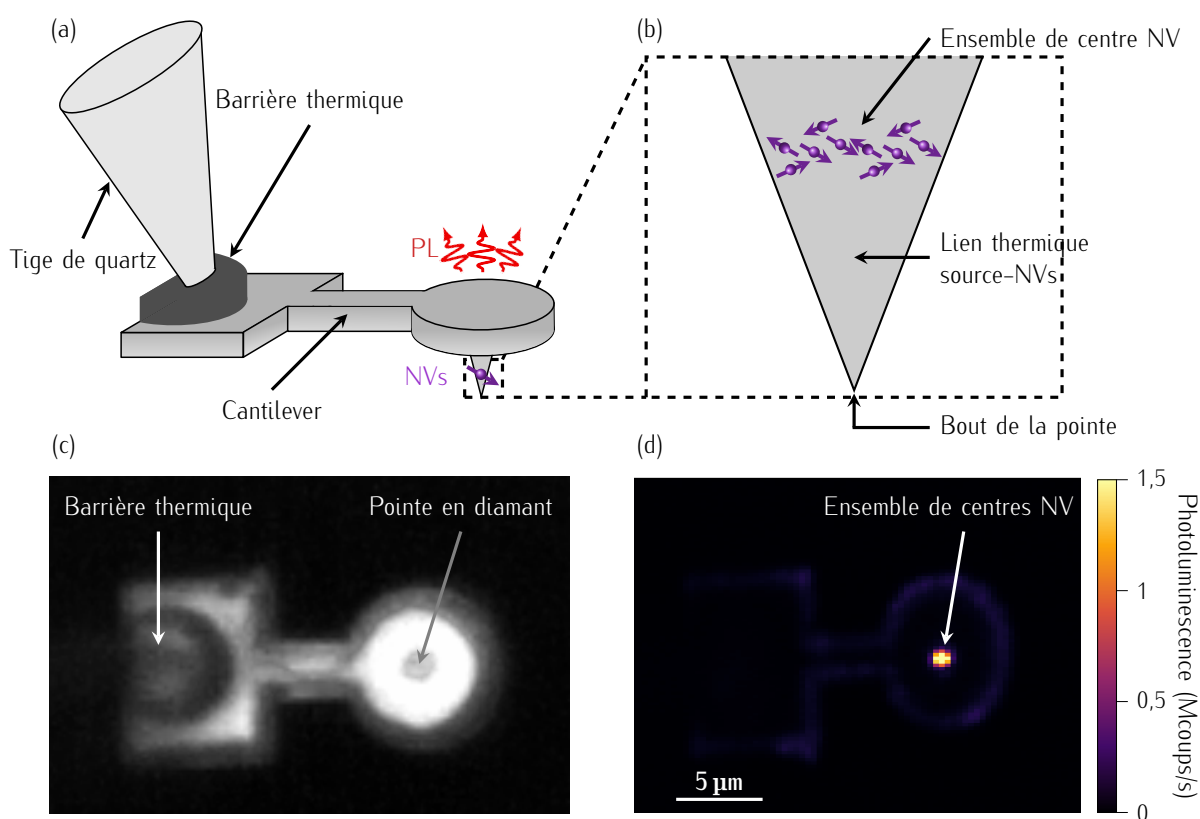


FIGURE 2.1 – (a) Schéma du dispositif pour réaliser l'imagerie à balayage, comprenant une pointe en diamant optimisée pour l'imagerie thermique, fixée à un cantilever de faible volume de diamant relié par une barrière thermique à une tige en quartz. (b) Agrandissement du schéma présenté en (a) au niveau de la pointe en diamant. (c) Image optique de la vue du dessus de la pointe en diamant optimisée pour la mesure de la température. (d) Cartographie de la photoluminescence d'une pointe typique montrant l'émission de l'ensemble des centres NV au centre de la partie ronde du cantilever.

Dans ce chapitre, toutes les mesures de température sont réalisées avec ce nouveau type de pointe en diamant optimisée pour la mesure de la température. Ces pointes ont été fabriquées par l'entreprise *QNAMI*. Ces mesures ont pour objectif de confirmer les performances de ce capteur de

température. Dans un premier temps, on va s'attacher à estimer sa sensibilité en température et dans un second temps, sa résolution spatiale.

## 2.1.2 Sensibilité en température de la pointe en diamant optimisée

### Sensibilité en température en régime d'excitation continue

La mesure de la température exploite ici la dépendance en température de la fréquence de résonance  $D$  du spin électronique associé au centre NV dans son état fondamental. Cette valeur est lue en mesurant optiquement le spectre de résonance magnétique. Dans le [Chapitre 1](#), on a discuté des paramètres intervenant dans la sensibilité lors de cette mesure. Cette dernière est définie pour des excitations laser et micro-onde continues comme suit :

$$\eta_{T_{cw}} = \frac{\mathcal{P}_F}{\left| \frac{dD}{dT} \right|} \frac{\Delta\nu}{C\sqrt{\mathcal{R}}} \quad (2.1)$$

avec  $\mathcal{P}_F$  le paramètre numérique associé à la fonction d'ajustement de la raie de résonance du spectre de résonance magnétique ( $\mathcal{F}_{\text{Gaussienne}} \approx 0,70$  et  $\mathcal{F}_{\text{Lorentzienne}} \approx 0,77$ ),  $D$  le terme de clivage axial du spin électronique dans l'état fondamental,  $T$  la température,  $\mathcal{R}$  le taux de comptage quand la fréquence du champ micro-onde est hors résonance,  $C$  le contraste de la raie de résonance et  $\Delta\nu$  sa largeur de raie à mi-hauteur.

Dans un premier temps, on peut se concentrer sur le terme décrivant la variation de la position de la raie de résonance  $D$  en fonction de la température :  $\frac{dD}{dT}$ . Pour mesurer cette évolution expérimentalement, on utilise un échantillon composé d'un substrat de quartz sur un porte-échantillon sur lequel on ajoute une source de chaleur (résistance chauffante ainsi qu'un thermomètre commercial (*Thorlabs TH100PT*)) (voir [Figure 2.2 \(a\)](#)). Tout le porte-échantillon ainsi que le morceau de quartz est alors chauffé à une température définie et cette dernière est lue par le thermomètre positionné lui aussi sur le porte-échantillon. On mesure alors le spectre de résonance magnétique pour différentes températures lorsque la pointe est mise en contact avec le substrat de quartz chauffé (voir [Figure 2.2 \(b\)](#)). On remarque que lorsque l'on augmente la température, la valeur de  $D$  se décale vers les basses fréquences comme attendu et en utilisant un ajustement linéaire, on peut obtenir, autour de la température ambiante, une variation  $\left| \frac{dD}{dT} \right| = 70 \pm 1 \text{ kHz K}^{-1}$  (voir [Figure 2.2 \(c\)](#)). Cette valeur est en adéquation avec les valeurs trouvées dans la littérature [83–85]. C'est cette valeur que l'on utilisera dans tout le chapitre pour estimer la sensibilité. On peut souligner que cette valeur est indépendante de l'orientation des centres NV suivant les quatre directions possibles dans le diamant, c'est-à-dire les axes  $[111]$ ,  $[1\bar{1}\bar{1}]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}1]$  et  $[\bar{1}11]$ . Pour chacune des températures de mesure, on a extrait, à partir du spectre de résonance magnétique, la sensibilité thermique suivant l'équation 2.1. On obtient alors une valeur de l'ordre de  $1,02 \pm 0,04 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$  (voir [Figure 2.2 \(d\)](#)).

Les barres d'erreur sur la mesure de la sensibilité proviennent directement de l'erreur sur la valeur de  $D$  dans nos conditions de mesure. Bien que ces barres d'erreur ne permettent pas de confirmer une tendance, on relève que la sensibilité semble se détériorer lorsque la température augmente. Cela peut s'expliquer par la diminution du contraste avec la température induite par une augmentation de la dynamique de relaxation du spin [92]. La diminution du temps de relaxation  $T_1$  avec la température peut, en effet, avoir pour conséquence de réduire l'efficacité de polarisation du spin électronique et de ce fait, de l'efficacité du renversement des populations lors de la mesure du spectre de résonance magnétique qui joue directement un rôle dans la valeur du contraste obtenue.

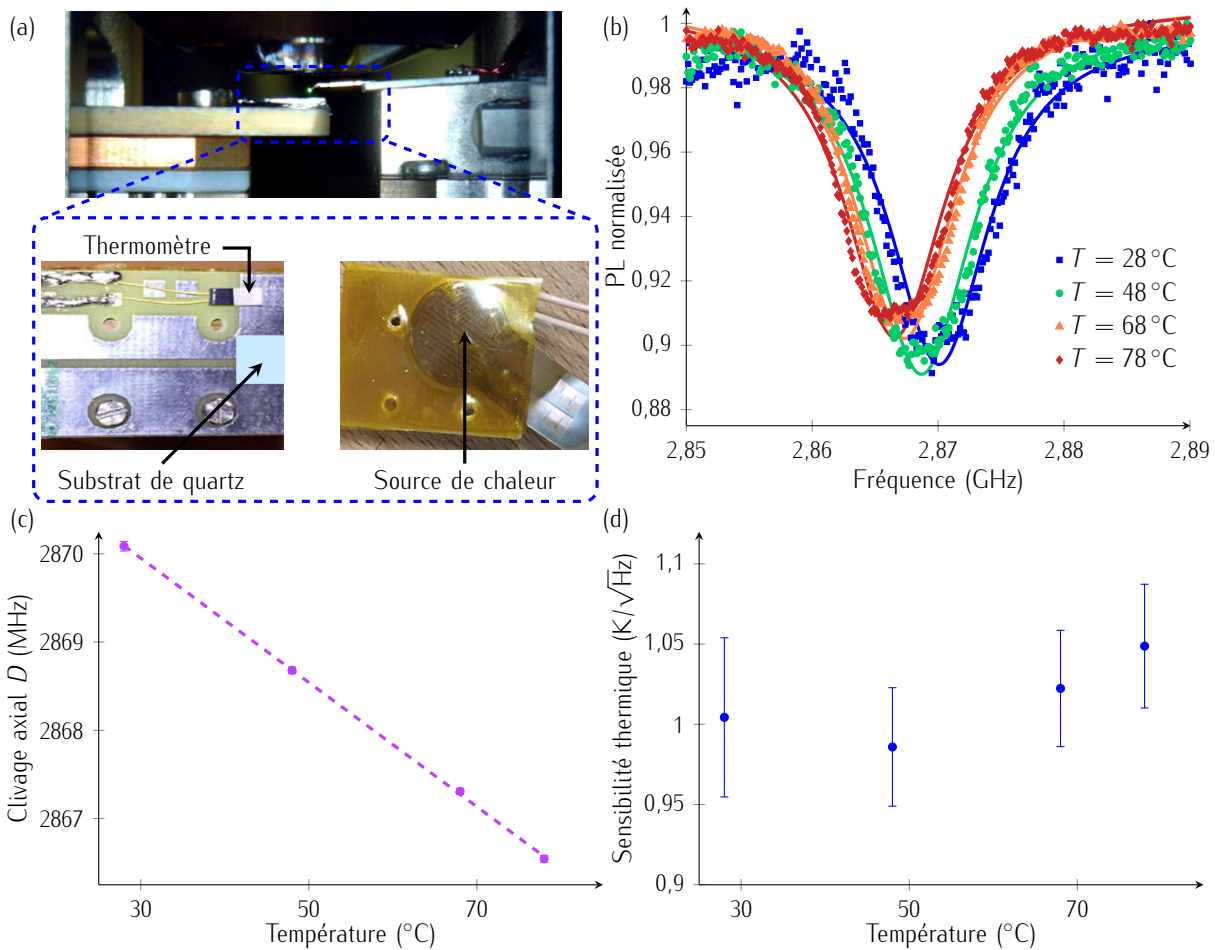


FIGURE 2.2 – (a) Photographie de la configuration expérimentale de l'échantillon et de la pointe en diamant avec, en dessous le zoom sur le porte-échantillon. L'image à gauche correspond à une vue du porte-échantillon du dessus où on peut voir le morceau de quartz en bleu ciel et le thermomètre tandis que l'image à droite montre une vue du dessous où se trouve la résistance chauffante. (b) Comparaison des spectres de résonance magnétique pour différentes températures ( $T = 28^\circ\text{C}$ ,  $T = 48^\circ\text{C}$ ,  $T = 68^\circ\text{C}$  et  $T = 78^\circ\text{C}$  respectivement en bleu, vert, orange et rouge). La fonction d'ajustement est une simple Lorentzienne. (c) Évolution de la position de  $D$ , déterminée par l'ajustement des spectres de résonance magnétique par une fonction lorentzienne, en fonction de la température. Cette évolution est linéaire :  $\left| \frac{dD}{dT} \right| = 70 \pm 1 \text{ kHz K}^{-1}$ . (d) Mesure de la sensibilité thermique sans champ magnétique externe qui atteint  $1,02 \pm 0,04 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

Notons que lors de ces mesures de la variation de  $D$  avec la température, aucun champ magnétique externe n'est utilisé afin de distinguer les quatre orientations des centres NV qui se trouvent dans la pointe. Contrairement à l'imagerie magnétique, l'application d'un tel champ magnétique externe n'est a priori pas nécessaire puisque la fréquence de résonance et son évolution avec la température sont les mêmes pour les quatre familles de centres NV. En revanche, si on doit faire l'imagerie d'une source de chaleur produisant en même temps un champ magnétique, l'application d'un champ magnétique externe aligné suivant une des quatre orientations devient nécessaire afin d'isoler une seule famille de centres NV. En effet, le champ magnétique généré par l'échantillon va induire des éclatements des niveaux d'énergie  $m_s = \pm 1$  différents pour les différentes orientations des centres NV qui composent l'ensemble et sans l'application de ce champ magnétique externe, il devient alors difficile de faire une mesure précise de la température mais aussi du champ magnétique. C'est la raison pour laquelle par la suite, nous nous placerons dans cette situation : un champ magnétique externe d'environ 6 mT est appliqué le long de l'axe de quantification de l'une des quatre orientations possibles.

Le contraste  $\mathcal{C}$  ainsi que la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  interviennent aussi dans l'expression de la sensibilité. Ces paramètres sont directement affectés par les conditions expérimentales d'excitation laser et micro-onde [114]. Il est, en effet, primordial d'optimiser les puissances laser et micro-onde afin de maximiser la sensibilité. Afin de comprendre l'impact de ces deux excitations, on peut introduire un modèle simplifié à deux niveaux composé uniquement d'un état  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ .

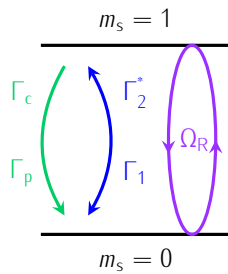


FIGURE 2.3 – Schéma du modèle simplifié composé de deux niveaux.

Dans ce modèle, seul l'état fondamental est considéré. Les effets liés au pompage optique sur la dynamique de relaxation des populations et sur leurs cohérences sont introduits au travers du taux de polarisation  $\Gamma_p$  et du taux de déphasage des cohérences  $\Gamma_c$  (voir Figure 2.3). Le taux de polarisation  $\Gamma_p$  suit une loi de saturation avec la puissance optique comme suit :

$$\Gamma_p = \Gamma_p^\infty \frac{s}{1+s} \quad (2.2)$$

avec  $s = \frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{sat}}}$  rapport de la puissance optique  $\mathcal{P}_{\text{opt}}$  sur la puissance de saturation  $\mathcal{P}_{\text{sat}}$  de la transition et  $\Gamma_p^\infty$  désigne le taux de polarisation à la saturation. Ce dernier est limité par le temps de vie de l'état métastable qui est de l'ordre de grandeur de 200 ns à température ambiante [80], ce qui donne  $\Gamma_p^\infty \approx 5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ . De même, le taux de déphasage des cohérences  $\Gamma_c$  peut être défini comme suit :

$$\Gamma_c = \Gamma_c^\infty \frac{s}{1+s} \quad (2.3)$$

où  $\Gamma_c^\infty$  désigne le taux de déphasage des cohérences à saturation. En première approximation, on peut considérer que la destruction des cohérences dans l'état excité est uniquement due au processus d'émission spontanée. Dans ce cas,  $\Gamma_c^\infty$  est limité par le temps de vie de l'état excité qui est de l'ordre de grandeur de 13 ns [79], ce qui donne  $\Gamma_c^\infty \approx 8 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ .

Ces deux contributions  $\Gamma_p$  et  $\Gamma_c$  induites par le pompage optique ne sont pas les seuls phénomènes ayant une contribution sur les populations et les cohérences. En effet, deux autres contributions intrinsèques au centre NV sont présentes. Ces contributions sont décrites par le taux de relaxation intrinsèque des populations  $\Gamma_1$  lié au couplage avec des phonons de la matrice de diamant, et le taux de cohérence  $\Gamma_2^*$  dominé par l'interaction spin-spin avec les impuretés paramagnétiques environnantes. En supposant que le paramètre de saturation  $s > 10^{-2}$  et que les processus intrinsèques de relaxation et de cohérence vérifient  $\Gamma_1 \ll \Gamma_p$  et  $\Gamma_2^* \ll \Gamma_c$ , on peut définir le contraste de la raie de résonance  $\mathcal{C}$  comme [114] :

$$\mathcal{C} = \Theta \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R^2 + \Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty \left(\frac{s}{1+s}\right)^2} \quad (2.4)$$

avec  $\Theta = \frac{(\mathcal{R}_0^\infty - \mathcal{R}_1^\infty)}{2\mathcal{R}_0^\infty}$ , facteur de normalisation dépendant des taux de comptage  $\mathcal{R}_i^\infty$  détectés quand le centre NV est dans l'état  $m_s = i$  avec  $i = (0, 1)$  et  $\Omega_R = \zeta \sqrt{\mathcal{P}_{mw}}$  est la fréquence de Rabi. Cette fréquence est proportionnelle à la racine carrée de la puissance micro-onde appliquée  $\mathcal{P}_{mw}$  avec un facteur de proportionnalité  $\zeta$  dépendant des conditions expérimentales.

De même, en considérant que  $s > 10^{-2}$ , la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  possède un profil lorentzien et peut s'exprimer comme suit [114] :

$$\Delta\nu = \frac{\Gamma_c^\infty}{2\pi} \sqrt{\left(\frac{s}{1+s}\right)^2 + \frac{\Omega_R^2}{\Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty}} \quad (2.5)$$

Par la suite, on va regarder quel est l'impact de l'excitation laser puis de l'excitation micro-onde sur la sensibilité thermique.

### Impact de l'excitation laser sur la sensibilité sous excitations continues

À partir de l'équation 2.4 et de l'équation 2.5, on peut prédire l'évolution du contraste et de la largeur de raie à mi-hauteur sous l'effet de la puissance laser pour une puissance micro-onde fixe. Dans ce cas, le terme  $\Omega_R$  reste constant tandis que l'augmentation de la puissance optique d'excitation  $\mathcal{P}_{opt}$  se traduit par une augmentation du paramètre  $s$ . Dès lors que la puissance laser  $\mathcal{P}_{opt}$  augmente, on s'attend à ce que le contraste  $\mathcal{C}$  diminue et que la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  augmente. Ceci est expérimentalement vérifié pour une puissance micro-onde  $\mathcal{P}_{mw} = 0,01$  W (voir Figure 2.4 (a)-(b)). On retrouve bien une diminution du contraste avec la puissance optique ainsi que le comportement standard du phénomène d'élargissement de puissance de la largeur de raie lié à l'excitation simultanée optique et micro-onde en continu.

Il est intéressant de voir si le modèle introduit précédemment, malgré sa très grande simplicité, reproduit nos expériences. Pour cela on peut commencer par réécrire le contraste et la largeur de raie en fonction du paramètre  $s$  comme :

$$\mathcal{C}(s) = \frac{\Theta}{1 + \mathcal{B}_0 \left(\frac{s}{1+s}\right)^2} \quad (2.6)$$



$$\Delta\nu(s) = \Delta\nu_0 \sqrt{\mathcal{B}_0 \left( \frac{s}{1+s} \right)^2 + 1} \quad (2.7)$$

avec  $\mathcal{B}_0 = \frac{\Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty}{\Omega_R^2} = \frac{\Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty}{\zeta^2 \mathcal{P}_{mw}}$  et  $\Delta\nu_0$  la valeur de  $\Delta\nu(s)$  quand  $s < 10^{-1}$  soit  $\Delta\nu_0 = \frac{\zeta \sqrt{\mathcal{P}_{mw} \Gamma_c^\infty}}{(2\pi \sqrt{\Gamma_p^\infty})}$ .

Dans nos expériences présentées sur la [figure 2.4](#) (b), ce terme  $\Delta\nu_0$  vaut 9,74 MHz.

L'ajustement des points expérimentaux par le modèle s'appuie sur trois paramètres ajustables :  $\Theta$ ,  $\mathcal{B}_0$ , et la puissance de saturation  $\mathcal{P}_{sat}$  qui intervient dans l'expression de  $s$ . Cette puissance de saturation peut être approchée à partir d'une mesure du taux de comptage hors résonance  $\mathcal{R}(s)$  en fonction de la puissance optique, qui, pour un centre NV unique, s'écrit :

$$\mathcal{R}(s) = \mathcal{R}_\infty \frac{s}{1+s} \quad (2.8)$$

avec  $\mathcal{R}_\infty$  le taux de comptage à la saturation qui vaut  $\mathcal{R}_\infty = 4,5 \times 10^6$  coups/s dans nos expériences.

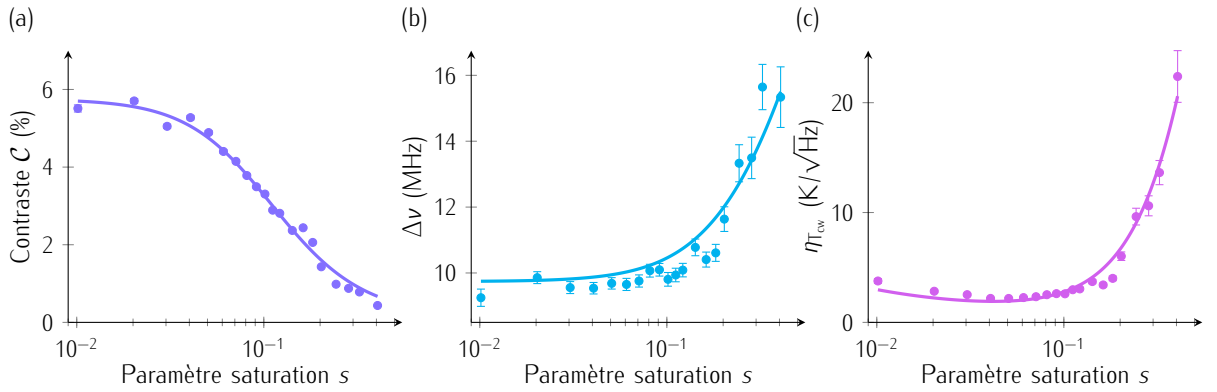


FIGURE 2.4 – Évolution du contraste  $\mathcal{C}$  (a), de la largeur à mi-hauteur  $\Delta\nu$  de la raie de résonance (b) et de la sensibilité (c) en fonction de  $s$ , rapport entre la puissance laser  $\mathcal{P}_{opt}$  et la puissance de saturation effective  $\mathcal{P}_{sat}$ . Les points expérimentaux sont indiqués par des ronds. Les fonctions d'ajustement en trait plein sont décrites par l'équation 2.6, l'équation 2.7 et l'équation 2.9. Les paramètres d'ajustement sont  $\Theta$ ,  $\mathcal{B}_0$  ainsi que  $\mathcal{A}_{laser}$ . La meilleure sensibilité est obtenue pour une puissance laser  $\mathcal{P}_{opt} = 125 \mu\text{W}$  et vaut  $2,2 \pm 0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

Cependant, cette expression s'applique parfaitement pour des centres NV uniques. Dans le cas d'ensemble de centres NV, comme cela est le cas dans nos pointes, la dispersion en position des centres NV se traduit par une dispersion des puissances de saturation. Afin de prendre en compte cet effet, une solution approximative consiste à introduire une puissance de saturation effective dans l'expression du paramètre  $s$ , rendant compte de cette variabilité des puissances de saturation dans l'ensemble. On peut noter que cette puissance de saturation effective varie assez fortement d'une expérience à l'autre. Le meilleur ajustement de nos courbes expérimentales montrées en [figure 2.4](#) donne une valeur de la puissance de saturation effective égale à  $\mathcal{P}_{sat} = 2465 \mu\text{W}$ , une valeur de  $\Theta$  égale à  $57,5 \times 10^{-3}$  et une valeur moyenne de  $\mathcal{B}_0$  égale à 77,5. On peut déduire de ces ajustements la

valeur moyenne de  $\Gamma_c^\infty \approx 5,4 \times 10^8 \pm 0,3 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ , valeur proche de celles usuellement observées dans la littérature [79, 114].

On peut alors en déduire l'évolution de la sensibilité en fonction du paramètre de saturation  $s$ . Pour cela, on va reprendre l'équation 2.1 en y introduisant les expressions décrites par l'équation 2.6, l'équation 2.7 et l'équation 2.8 du contraste  $\mathcal{C}(s)$ , de la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu(s)$  et du taux de comptage  $\mathcal{R}(s)$ . On obtient :

$$\eta_{\text{TCW}}(s) = \mathcal{A}_{\text{laser}} (\mathcal{B}_0 \left(\frac{s}{1+s}\right)^2 + 1)^{\frac{3}{2}} \sqrt{\frac{1+s}{s}} \quad (2.9)$$

$$\text{avec } \mathcal{A}_{\text{laser}} = \frac{\mathcal{P}_{\mathcal{F}} \zeta \sqrt{\mathcal{P}_{\text{mw}} \Gamma_c^\infty}}{|dD/dT| 2\pi \Theta \sqrt{\Gamma_p^\infty \mathcal{R}_\infty}}.$$

Lors de l'ajustement des points expérimentaux de la sensibilité mesurée par l'équation 2.9, les termes  $\mathcal{A}_{\text{laser}}$  et  $\mathcal{B}_0$  sont des paramètres variables tandis la valeur de  $\Theta$  est fixée à la valeur déterminée lors des ajustements du contraste en fonction du paramètre de saturation  $s$ . Cet ajustement est présenté sur la figure 2.4 (c) et reproduit bien nos expériences malgré la très grande simplicité du modèle à deux niveaux employé.

### Impact de l'excitation micro-onde sur la sensibilité sous excitations continues

À partir de l'équation 2.4 et l'équation 2.5, on peut aussi prédire l'évolution du contraste, de la largeur de raie à mi-hauteur et de la sensibilité sous l'effet de la puissance de la micro-onde. Dans ce cas, la puissance laser et donc le paramètre  $s$  sont fixés tandis que le terme  $\Omega_R = \zeta \sqrt{\mathcal{P}_{\text{mw}}}$  varie. On s'attend à ce que le contraste  $\mathcal{C}$  et la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  augmentent lorsque la puissance micro-onde  $\mathcal{P}_{\text{mw}}$  augmente. Ceci est aussi expérimentalement vérifié pour une puissance laser optique fixée à  $\mathcal{P}_{\text{opt}} = 125 \mu\text{W}$  (voir Figure 2.5 (a)-(b)).

En repartant du modèle à deux niveaux, on peut reformuler l'expression du contraste en fonction de la puissance micro-onde  $\mathcal{C}(\mathcal{P}_{\text{mw}})$  comme :

$$\mathcal{C}(\mathcal{P}_{\text{mw}}) = \frac{\Theta}{1 + \frac{\mathcal{B}_1}{\mathcal{P}_{\text{mw}}}} \quad (2.10)$$

avec  $\mathcal{B}_1 = \frac{\Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty}{\zeta^2} \left(\frac{s}{1+s}\right)^2$ . On peut aussi réécrire de façon simplifiée l'évolution de la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu$  en fonction de la puissance micro-onde  $\mathcal{P}_{\text{mw}}$  comme :

$$\Delta\nu(\mathcal{P}_{\text{mw}}) = \frac{\Delta\nu'_0}{\sqrt{\mathcal{B}_1}} \sqrt{\mathcal{B}_1 + \mathcal{P}_{\text{mw}}} \quad (2.11)$$

avec  $\Delta\nu'_0 = \frac{\zeta \sqrt{\Gamma_c^\infty}}{(2\pi \sqrt{\Gamma_p^\infty})}$  la valeur de  $\Delta\nu(\mathcal{P}_{\text{mw}})$  quand  $\mathcal{P}_{\text{mw}}$  tend vers 0, soit 7,04 MHz dans les expériences présentées sur la figure 2.5 (b). De ces équations simplifiées décrites par l'équation 2.10 et l'équation 2.11, on se retrouve avec uniquement deux paramètres d'ajustement qui sont  $\Theta$  et  $\mathcal{B}_1$ .

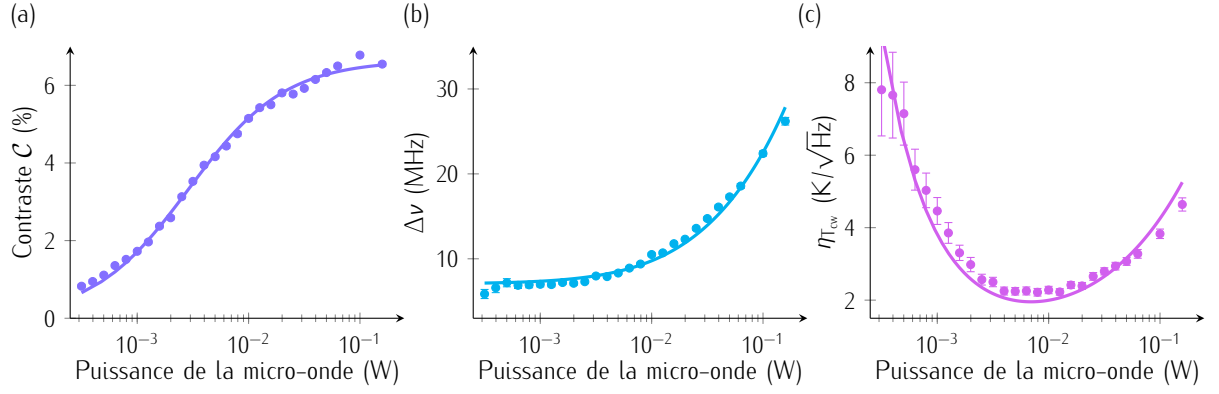


FIGURE 2.5 – Évolution du contraste  $\mathcal{C}$  (a), de la largeur à mi-hauteur  $\Delta\nu$  de la raie de résonance (b) et de la sensibilité en température (c) en fonction de la puissance micro-onde. Les mesures sont réalisées à puissance laser fixe  $\mathcal{P}_{\text{opt}} = 125 \mu\text{W}$ . Les fonctions d'ajustement sont décrites par l'équation 2.10, l'équation 2.11 et l'équation 2.12. Les paramètres d'ajustement sont  $\Theta$ ,  $\mathcal{B}_1$  ainsi que  $\mathcal{A}_{\text{mw}}$ . Les meilleurs ajustements sont ici obtenus pour une puissance de saturation effective de  $2465 \mu\text{W}$ . La meilleure sensibilité est obtenue pour une puissance micro-onde de  $\mathcal{P}_{\text{mw}} = 8 \text{ mW}$  et vaut  $2,2 \pm 0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

Enfin, on peut écrire l'évolution de la sensibilité en température en fonction de la puissance micro-onde  $\mathcal{P}_{\text{mw}}$ . Pour cela, on va reprendre l'équation 2.1 et en reprenant les différentes équations de la largeur de raie à mi-hauteur  $\Delta\nu(\mathcal{P}_{\text{mw}})$  et du contraste  $\mathcal{C}(\mathcal{P}_{\text{mw}})$ , on peut écrire :

$$\eta_{T_{\text{cw}}}(\mathcal{P}_{\text{mw}}) = \mathcal{A}_{\text{mw}} \frac{(\mathcal{B}_1 + \mathcal{P}_{\text{mw}})^{\frac{3}{2}}}{\mathcal{P}_{\text{mw}}} \quad (2.12)$$

$$\text{avec } \mathcal{A}_{\text{mw}} = \frac{\mathcal{P}_{\mathcal{F}} \zeta \sqrt{\Gamma_{\mathcal{C}}^{\infty}}}{\left| \frac{dD}{dT} \right| 2\pi\Theta \sqrt{\mathcal{R}\Gamma_{\text{p}}^{\infty}}}.$$

L'ajustement des points expérimentaux de la sensibilité montré sur la figure 2.5 (c) a été effectué en considérant deux paramètres d'ajustement que sont  $\mathcal{A}_{\text{mw}}$  et  $\mathcal{B}_1$  tandis que le coefficient est fixé à  $\Theta = 0,066$ , valeur extraite de l'ajustement du contraste. On trouve un excellent accord entre les mesures et l'ajustement pour une valeur moyenne de  $\mathcal{B}_1$  égale à  $5,5 \times 10^{-3} \text{ W}$ . En prenant en compte les différentes valeurs provenant des ajustements, on peut à nouveau déterminer une valeur moyenne  $\Gamma_{\mathcal{C}}^{\infty} = 6,8 \times 10^7 \pm 1,5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  ainsi que le coefficient de proportionnalité  $\zeta$  entre la puissance micro-onde et la fréquence de Rabi qui vaut  $\zeta = 122,5 \text{ MHz}/\sqrt{\text{W}}$ . La valeur de  $\Gamma_{\mathcal{C}}^{\infty}$  déterminée ici est plus proche des valeurs usuellement reportées dans la littérature [114]. La différence entre les valeurs de  $\Gamma_{\mathcal{C}}^{\infty}$  extraites des mesures en fonction de la puissance optique et micro-onde, peut s'expliquer par la probable trop grande simplicité de notre modèle qui se base sur un simple système à deux niveaux.

Ces expériences montrent qu'il existe alors une plage de puissances laser et micro-onde qui permet de maximiser la sensibilité. Pour la pointe en diamant ici qualifiée, la sensibilité en température atteint  $2,2 \pm 0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour une puissance optique continue  $\mathcal{P}_{\text{opt}} = 125 \mu\text{W}$  et une puissance micro-onde

continue  $\mathcal{P}_{\text{mw}} = 8 \text{ mW}$ . Cette sensibilité peut être améliorée. Tout d'abord, on rappelle que cette valeur est obtenue sous un champ magnétique externe non nul permettant de séparer les différentes familles de centres NV de la pointe en diamant. Cela détériore un peu la sensibilité en diminuant le contraste mais rend possible une mesure simultanée de la variation de température et du champ magnétique. Par ailleurs, bien que le mode d'excitation continu offre une bonne vitesse d'acquisition, celui-ci induit un élargissement de la raie de résonance qui se traduit par une détérioration de la sensibilité. Un moyen de contourner cela est de mesurer le spectre de résonance magnétique de manière impulsionnelle (voir [Chapitre 1](#)). Ceci est discuté dans le paragraphe suivant.

### Sensibilité en température en régime d'excitation impulsionnel

En régime impulsionnel, on applique des séquences adaptées d'impulsions laser et micro-onde et non pas des excitations optique et micro-onde continues. Les impulsions laser de durée  $T_{\text{laser}}$  et micro-onde de durée  $T_{\pi}$  ne sont pas appliquées simultanément et leurs durées optimales permettent de s'affranchir des phénomènes d'élargissement de la raie de résonance. La séquence d'impulsions appliquée est présentée sur la [figure 2.6](#) (a). Une première impulsion micro-onde de durée  $T_{\pi}$  fait basculer le spin initialement polarisé dans l'état  $m_s = 0$  vers l'état  $m_s = \pm 1$ . Elle est suivie d'une impulsion laser de durée  $T_{\text{laser}}$  utilisée à la fois pour lire l'état de spin avec un contraste élevé et pour polariser efficacement le spin dans l'état  $m_s = 0$  pour la prochaine séquence d'impulsions. Chaque séquence d'impulsions laser est suivie par un temps d'attente  $T_{\text{retard}}$  pour assurer la relaxation des populations piégées dans l'état metastable vers l'état  $m_s = 0$  avant d'appliquer l'impulsion micro-onde suivante. Dans ce cas, la largeur à mi-hauteur minimale  $\Delta\nu_{\text{min}}$  a une limite intrinsèque inversement proportionnelle au temps de cohérence  $T_2^*$ . Le spectre de résonance magnétique obtenu en appliquant cette séquence, est montré sur la [figure 2.6](#) (b). Ce spectre obtenu pour une valeur de  $T_{\pi}$  proche de  $T_2^*$ , ne présente plus une unique raie de résonance mais trois raies de résonance. En effet, la diminution de la largeur de raie permet de faire apparaître la structure hyperfine du centre NV liée au couplage avec le spin nucléaire de son noyau d'azote intrinsèque (voir [Chapitre 1](#)). Suivant ce protocole en régime impulsionnel, la sensibilité est alors maximale lorsque l'impulsion micro-onde est de durée  $T_{\pi} = T_2^*$  (voir [Chapitre 1](#)) et est décrite par l'équation :

$$\eta_{\text{pulse}} = \frac{\mathcal{P}_F}{\left|\frac{dD}{dT}\right|} \frac{\Delta\nu_{\text{min}}}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}_{\text{pulse}}}} \quad (2.13)$$

avec  $\mathcal{R}_{\text{pulse}} = \frac{\mathcal{R}T_{\text{laser}}}{T_{\text{séquence}}}$ ,  $T_{\text{laser}} = 300 \text{ ns}$  la durée de l'impulsion laser,  $T_{\text{séquence}} = T_{\text{laser}} + T_{\pi} + T_{\text{retard}}$  la durée totale de la séquence qui comprend les durées des impulsions laser  $T_{\text{laser}}$  et micro-onde  $T_{\pi} = T_2^*$  ainsi que le temps d'attente  $T_{\text{retard}} = 1 \mu\text{s}$  entre deux types d'impulsions. La largeur de raie  $\Delta\nu_{\text{min}}$  vaut quant à elle  $\frac{2\sqrt{\ln 2}}{\pi T_2^*}$  [114]. Ce protocole de mesure nécessite de connaître la valeur du temps de cohérence  $T_2^*$ .

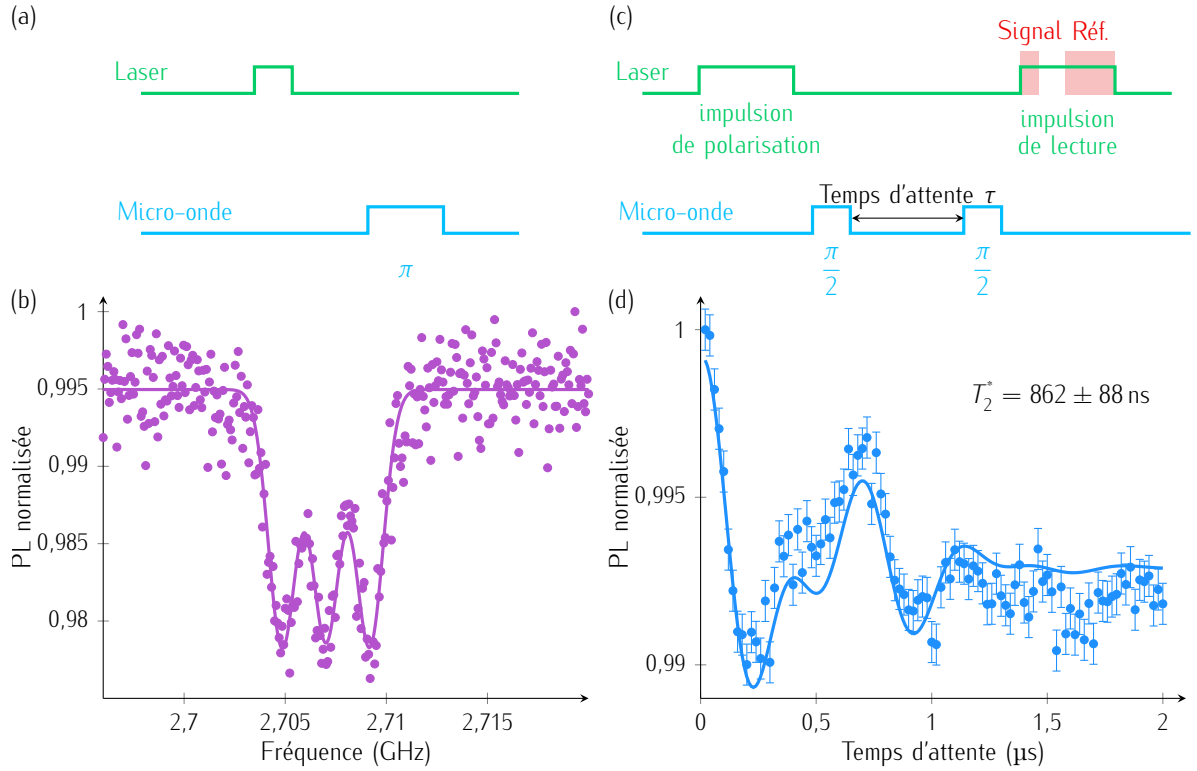


FIGURE 2.6 – (a) Séquence d'impulsions pour la mesure du spectre de résonance magnétique en régime impulsionnel montrée en (b). Dans cette mesure, la durée du pulse laser est  $T_{\text{laser}} = 300 \text{ ns}$ , la durée entre les impulsions laser et micro-onde est de  $T_{\text{retard}} = 1 \mu\text{s}$  et enfin la durée de l'impulsion micro-onde  $T_{\pi} = 920 \text{ ns}$  proche de la valeur du  $T_2^*$ . (c) Séquence d'impulsions pour la mesure du temps de cohérence  $T_2^*$ . (d) Courbe obtenue en utilisant la séquence montrée en (c) permettant de déterminer le temps de cohérence  $T_2^*$  du capteur de température. Le temps de cohérence  $T_2^* = 862 \pm 88 \text{ ns}$  est déterminé en utilisant la fonction d'ajustement  $\mathcal{F} = \exp\left(-\left(\frac{\tau}{T_2^*}\right)^2\right) \times \sum_{i=1}^2 A_i \sin(2\pi f_i t + \psi_i)$ . La puissance optique employée lors de la mesure est de  $250 \mu\text{W}$  et pour un champ magnétique externe aligné sur une seule orientation  $B_{\text{NV}} = 4,75 \text{ mT}$ .

Pour mesurer ce temps de cohérence  $T_2^*$ , on applique une séquence d'impulsions laser et micro-onde rappelée sur la figure 2.6 (c). Une première impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  place le spin dans une superposition cohérente. L'état de spin, après une durée de précession libre  $\tau$  variable, est alors mesuré en appliquant une seconde impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  et une impulsion laser de lecture. La courbe obtenue en faisant varier le temps d'attente  $\tau$ , est montrée sur la figure 2.6 (d). Cette courbe est ajustée par la fonction :  $\mathcal{F} = \exp\left(-\left(\frac{\tau}{T_2^*}\right)^2\right) \times \sum_{i=1}^2 A_i \sin(2\pi f_i t + \psi_i)$  avec  $f_i$  la différence entre la fréquence de résonance et la fréquence d'excitation des différentes transitions hyperfines et  $\psi_i$  leurs phases associées. Dans cette fonction, deux fonctions sinusoidales sont utilisées pour prendre en compte les oscillations provenant de l'effet de l'interaction hyperfine du spin du centre NV avec le spin nucléaire de l'azote. En effet, comme visible sur le spectre de la figure 2.6 (d), ce couplage induit un éclatement de la raie de résonance en trois raies de résonance de fréquences

différentes. Cependant, lors de la mesure du temps de cohérence, une seule fréquence est utilisée pour les impulsions micro-onde, ce qui signifie que seule une des raies est excitée à résonance. En plus de ces deux fonctions sinusoïdales, cette courbe présente un amortissement avec un temps caractéristique  $T_2^*$ , ici égal à  $862 \pm 88$  ns. Ce temps, lié à l'interaction spin-spin avec les impuretés paramagnétiques environnantes et avec le bain de spins nucléaires associés aux atomes de  $^{13}\text{C}$ , est plus long que celui usuellement observé dans les nanodiamants (de l'ordre 100 ns [220]) et s'approche de celui observé dans un diamant massif d'abondance isotopique naturelle (de l'ordre de quelques microsecondes [95]). De ces mesures, on peut déduire la sensibilité qui pourrait être atteinte en régime impulsif. Cette sensibilité limite vaut dans nos expériences  $1,3 \pm 0,2 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ .

Par ailleurs, une caractérisation du temps de relaxation longitudinale  $T_1$  lié au couplage avec les phonons et des temps de cohérence étendus par découplage dynamique  $T_2$  est réalisée. Ces temps caractéristiques sont importants pour la sensibilité. En effet, en ce qui concerne le temps de relaxation  $T_1$ , si celui-ci est trop rapide, la polarisation dans l'état  $m_s = 0$  est plus difficile et cela se répercute sur la valeur du contraste  $\mathcal{C}$  sur le spectre de résonance magnétique. De plus, on peut prolonger le temps de cohérence du centre NV en contrôlant son évolution, de manière dynamique, afin de le rendre moins sensible au bruit de l'environnement. Ces techniques portent le nom de découplage dynamique (voir Chapitre 1). Elles utilisent des séquences d'impulsions qui retournent périodiquement l'état de spin pour compenser la phase aléatoire due au couplage avec le bain de spins accumulée à chaque répétition de la mesure [99]. La technique la plus simple est celle de l'écho de spin. C'est celle que nous avons employée. Les séquences d'impulsions utilisées pour mesurer les temps  $T_1$  et  $T_2$  sont montrées sur la figure 2.7 (a) et la figure 2.7 (c). Pour la mesure du temps de relaxation longitudinale, une première impulsion laser est appliquée pour initialiser le spin dans l'état  $m_s = 0$ , puis une seconde impulsion laser permet de sonder l'état de spin après un temps d'attente  $\tau$  variable. Le taux de photoluminescence lors de l'impulsion de lecture en fonction du temps d'attente  $\tau$  forme ainsi une courbe exponentielle décroissante de temps caractéristique  $T_1$ . Pour la pointe étudiée, la courbe est montrée sur la figure 2.7 (b), on obtient  $T_1 = 3,4 \pm 0,3$  ms. Pour la mesure de  $T_2$ , on utilise la même séquence que celle employée pour la mesure de  $T_2^*$  mais on rajoute une impulsion micro-onde de durée  $T_\pi$  au milieu de la durée  $\tau$  de précession libre. On obtient une courbe exponentielle décroissante de temps caractéristique  $T_2$  (voir Figure 2.7 (d)). On obtient ici  $T_2 = 63 \pm 5$   $\mu\text{s}$ . Ces valeurs montrent que malgré le faible volume de la pointe en diamant, les temps de relaxation  $T_1$  et de cohérences  $T_2^*$  ainsi que  $T_2$  restent dans les ordres de grandeur des valeurs typiques d'un centre unique isolé dans un diamant massif d'abondance isotopique naturelle, respectivement de l'ordre de 1 – 10 ms, 1  $\mu\text{s}$  [95] et 100  $\mu\text{s}$  [102] contre  $10^{-3}$  – 1 ms [221], 100 ns [220] et 1  $\mu\text{s}$  [220] dans les nanodiamants. Les valeurs des trois caractéristiques  $T_1$ ,  $T_2^*$  et  $T_2$  sont rassemblées dans le tableau 2.1.

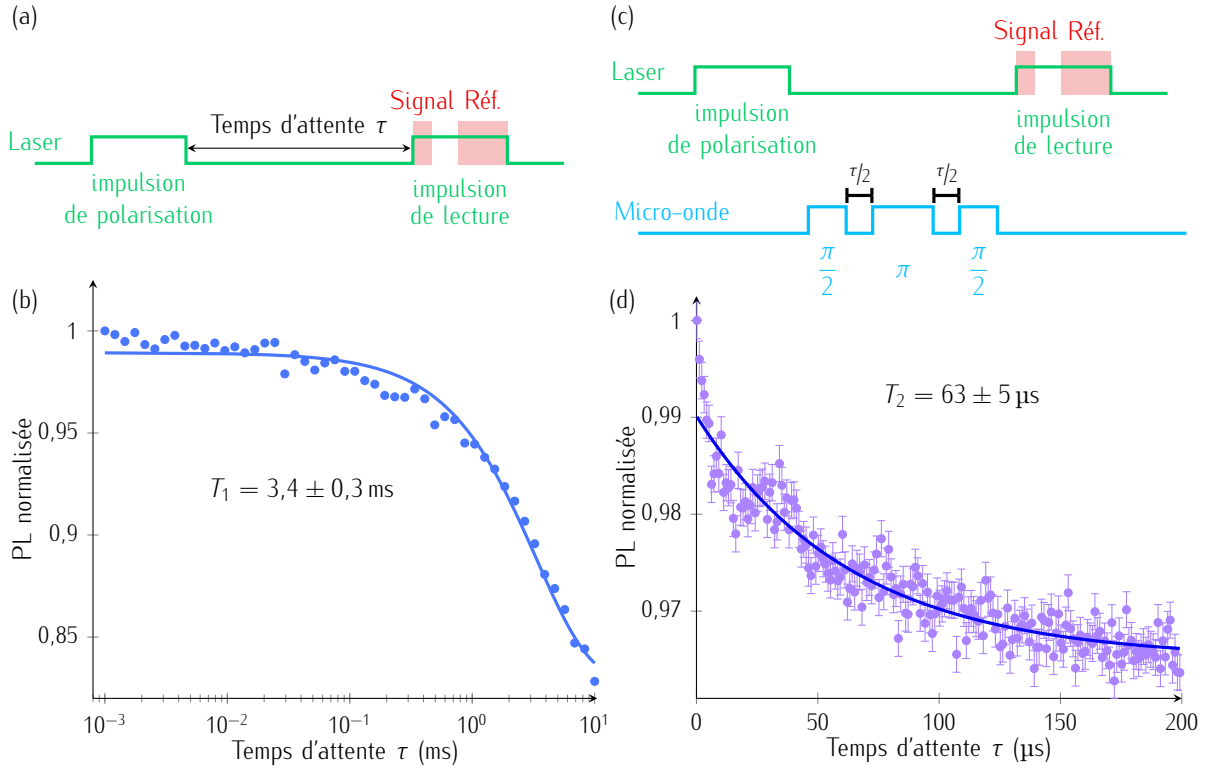


FIGURE 2.7 – (a) Séquence d'impulsions pour la mesure du temps de relaxation longitudinale  $T_1$ . (b) Courbe obtenue en utilisant la séquence montrée en (a) permettant de déterminer le temps  $T_1$  du capteur de température. Ce temps caractéristique  $T_1 = 3,4 \pm 0,3$  ms est obtenu en ajustant les points expérimentaux par la fonction  $\mathcal{F} = \exp(-\frac{\tau}{T_1})$ . (c) Séquence d'impulsions pour la mesure du temps de cohérence  $T_2$  suivant une séquence d'écho de spin. (d) Courbe obtenue en utilisant la séquence montrée en (c) permettant de déterminer le temps  $T_2$  du capteur de température enregistré pour un champ magnétique externe aligné sur une seule orientation  $B_{NV} = 4,75$  mT. Ce temps caractéristique  $T_2 = 63 \pm 5$   $\mu$ s est obtenu en ajustant les points expérimentaux par la fonction  $\mathcal{F} = \exp(-\frac{\tau}{T_2})$ . La puissance optique employée est d'environ 250  $\mu$ W, permettant d'assurer une bonne efficacité d'initialisation, tout en préservant un bon rapport signal sur bruit de lecture.

	Diamant massif	Nanodiamant	Pointe en diamant
$T_1$	1 – 10 ms	$10^{-3}$ – 1 ms	$3,4 \pm 0,3$ ms
$T_2^*$	quelques $\mu$ s	environ 100 ns	$862 \pm 88$ ns
$T_2$	quelques centaines de $\mu$ s	quelques $\mu$ s	$63 \pm 5$ $\mu$ s

TABLE 2.1 – Valeurs typiques des temps de relaxation  $T_1$ ,  $T_2^*$  et  $T_2$  de l'état de spin électronique du centre NV dans son niveau fondamental, à température ambiante, dans les cas (i) de centres NV natifs dans un diamant massif d'abondance isotopique naturelle, (ii) de centres NV implantés dans des nanodiamants et (iii) des centres NV dans nos pointes en diamant.

## Perspectives pour accroître la sensibilité thermique de la pointe en diamant

Nos caractérisations montrent que la sensibilité thermique expérimentale atteint environ le  $K/\sqrt{\text{Hz}}$ , certaines pointes montrant des sensibilités jusqu'à  $0,7 K/\sqrt{\text{Hz}}$ . Ces sensibilités sont cependant plus faibles que les attendus théoriques autour de  $0,1 K/\sqrt{\text{Hz}}$  (estimé en absence de champ magnétique). Plusieurs paramètres pourraient expliquer cette plus faible sensibilité, notamment le recours à seulement une famille de centres NV parmi quatre pour la mesure. En effet, les pointes en diamant ici employées sont formées dans du diamant orienté (100). Dans ces pointes, les centres NV sont présents suivant quatre orientations possibles équiprobables et nos mesures, réalisées en présence d'un champ magnétique le long d'une seule orientation, ne s'appuient que sur une seule de ces quatre familles, les trois autres familles ne contribuant pas au signal mais devenant une source parasite réduisant notamment le contraste de la raie de résonance magnétique. Ceci a pour conséquence de réduire le taux de comptage d'un facteur  $\sqrt{4}$  environ ainsi que le contraste d'un facteur 2 (passant de 10 % à 5 %) dans nos expériences. La sensibilité mesurée est donc réduite d'un facteur 4 environ par rapport aux attendus théoriques.

On peut aussi se demander si le choix de recourir à une dizaine de centres NV dans la pointe est intéressant comparé à un centre unique. En effet, la sensibilité est proportionnelle à  $\frac{1}{C\sqrt{R}}$ . Si on s'intéresse à la raie de résonance d'un centre unique sous un champ magnétique externe, le contraste peut aisément atteindre 15 – 20 %. En comparaison avec la pointe en diamant, en présence d'un champ magnétique externe, le contraste est plutôt de l'ordre de 5 %, ce qui détériore d'un facteur 3 – 4 environ la sensibilité. Cependant, le taux de comptage intervient aussi et la pointe en diamant composée d'une dizaine de centre NV va produire un taux de comptage à peu près  $\sqrt{\frac{10}{4}} \approx 1,6$  fois plus important si on ne sélectionne qu'une seule famille sur les quatre possibles. Ceci se traduit par une détérioration de la sensibilité d'un facteur  $\approx \frac{4}{\sqrt{2.5}} \approx 2,5$  si on recourt à une dizaine de centres NV.

Afin de pallier à ce problème, une stratégie serait de recourir à des ensembles de centres NV présentant une orientation préférentielle. Ceci est possible en fabriquant une pointe en diamant dans un cristal orienté (113) par exemple [222-225] et non (100) comme dans nos travaux. Plusieurs avantages sont attendus. En effet, l'ensemble des centres NV contribue alors à la mesure et non plus une fraction, ce qui se traduit par un meilleur taux de collecte et un meilleur contraste. Pour une dizaine de centres NV avec un contraste d'environ 15 – 20 %, on peut s'attendre à une amélioration de la sensibilité par rapport à nos mesures d'un facteur 6 – 8 environ. Ces pointes sont en cours de développement au sein de l'entreprise QNAMI. Notons que la sensibilité pourrait encore être améliorée par le recours à des techniques impulsionnelles et protocoles de découplage dynamique (voir [Chapitre 1](#)).



### 2.1.3 Résolution spatiale de la pointe en diamant optimisée

Si ces pointes optimisées permettent déjà d'atteindre des sensibilités autour du  $\text{K}/\sqrt{\text{Hz}}$ , un autre atout attendu pour ces pointes réside dans leur résolution spatiale inférieure à la centaine de nanomètres. En effet, cette résolution est déterminée par le diamètre du bout de la pointe. L'imagerie au microscope électronique des pointes optimisées montre que ce diamètre est d'environ 30 nm (voir Figure 2.8 (a)-(b)). On peut donc espérer une résolution spatiale de cet ordre de grandeur. La démonstration expérimentale de la limite de la résolution spatiale du capteur nécessite alors d'imager le profil d'échauffement induit par une source locale de chaleur de quelques dizaines de nm. Cette caractérisation s'avère délicate. Il faut pouvoir en effet disposer de nanosources modèles de chaleur de dimension inférieure à la centaine de nm. On a pour cela exploré plusieurs architectures de nanosources de chaleur qui seront décrites par la suite. La première d'entre elles est formée de nanoparticules métalliques déposées sur un substrat. Leur étude est l'objet de la prochaine partie.

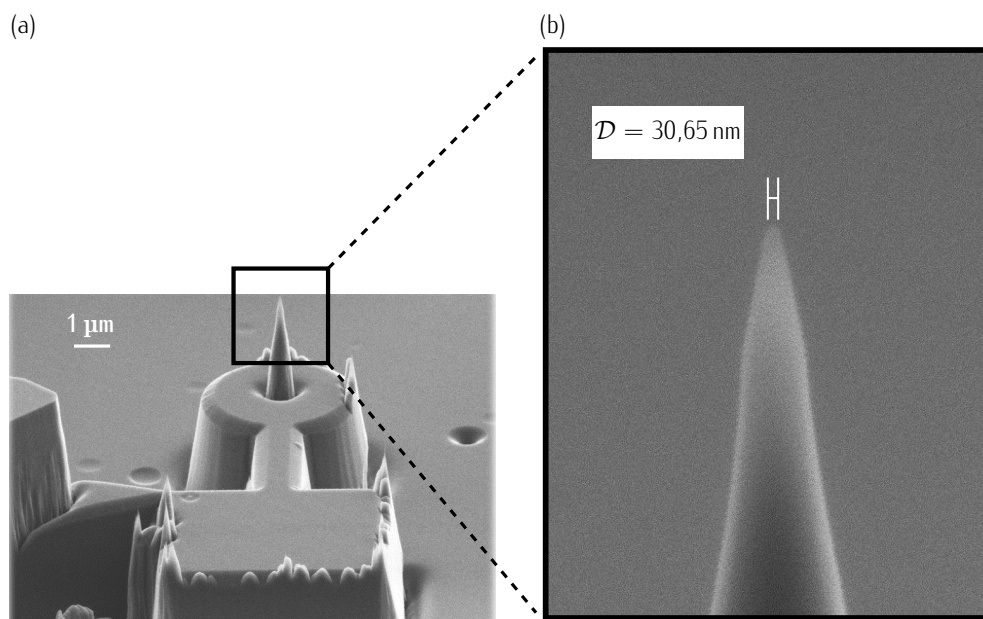


FIGURE 2.8 – (a)-(b) Images au microscope électronique réalisées sur une pointe en diamant optimisée pour la cartographie de température, révélant que le diamètre du bout de la pointe vaut environ 30 nm.

## 2.2 Nanosources de chaleur formées par des structures thermoplasmoniques

Dans cette partie, des structures thermoplasmoniques sont utilisées comme nanosources de chaleur dans le but de tester la résolution spatiale du nouveau capteur de température. Tout d'abord, je vais

décrire les propriétés de ces structures thermoplasmoniques. Puis, j'étudierai ensuite la variation de la température produite par ces structures thermoplasmoniques dans les conditions où la pointe en diamant est statique et enfin, en régime de balayage de la pointe au-dessus de ces structures chauffantes.

### 2.2.1 Propriétés des structures thermoplasmoniques

Les plasmons sont des oscillations collectives des électrons libres d'un métal, qui sont excitées par une onde lumineuse. On peut générer des ondes plasmons à l'interface entre un métal et un isolant. On parle alors de plasmons polaritons de surface. Dans les nanoparticules, l'onde plasmon prend une forme différente, on parle de plasmon de surface localisé. Les plasmons de surface localisés résultent du confinement d'un mode plasmon dans une nanoparticule de diamètre inférieur ou du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de l'onde électromagnétique employée pour l'exciter. Ces diamètres sont typiquement de 2 – 200 nm. Les plasmons de surface localisés, à l'inverse des plasmons polaritons de surface, sont radiatifs, ils peuvent donc se coupler directement à la lumière. Ils possèdent, par ailleurs, une résonance lorsque la fréquence de l'onde électromagnétique incidente correspond à la fréquence propre des oscillations collectives des électrons libres de la bande de conduction. À cette résonance, il se produit une amplification des phénomènes d'absorption et/ou de diffusion par la nanoparticule. Cette compétition est importante : si on souhaite réaliser une nanosource de chaleur avec de telles nanoparticules, il faut que le processus dominant résultant de l'interaction soit l'absorption et non la diffusion. Cette compétition entre ces deux phénomènes ainsi que la longueur d'onde de résonance du plasmon de surface localisé peut être contrôlée par plusieurs paramètres comme par exemple la taille, la géométrie, le métal formant la nanoparticule ou même l'indice de réfraction du milieu autour de la nanoparticule. Par un choix judicieux de ces paramètres, on peut réaliser une nanosource locale de chaleur, permettant de tester les limites de la résolution spatiale du capteur de température.

Pour ce faire, on souhaite avoir une nanoparticule présentant un maximum d'absorption ainsi qu'une longueur d'onde de résonance dans l'infrarouge afin que le laser d'excitation des nanoparticules soit à des longueurs d'onde différentes non seulement du laser vert d'excitation des centres NV mais aussi du signal de photoluminescence de ces derniers (entre 600 – 800 nm). Pour contrôler ces deux conditions, on va jouer sur deux paramètres : la taille de la nanoparticule et sa géométrie.

Tout d'abord, on peut commencer par décrire les phénomènes d'absorption et de diffusion en fonction de l'intensité lumineuse  $\mathcal{I}$  de l'onde électromagnétique d'excitation. Ces phénomènes sont

usuellement décrits par le biais des sections efficaces absorption  $\sigma_{\text{abs}}$  et de diffusion  $\sigma_{\text{diff}}$  définies comme :

$$\sigma_{\text{abs}} = \frac{\mathcal{P}_{\text{abs}}}{\mathcal{I}} \quad (2.14)$$

$$\sigma_{\text{diff}} = \frac{\mathcal{P}_{\text{diff}}}{\mathcal{I}} \quad (2.15)$$

où  $\mathcal{P}_{\text{abs}}$  et  $\mathcal{P}_{\text{diff}}$  sont respectivement les puissances absorbée et diffusée par la nanoparticule lorsqu'elle est éclairée par un laser d'intensité  $\mathcal{I}$ . En sommant la contribution des sections efficaces d'absorption et de diffusion, on peut définir la section efficace d'extinction comme :

$$\sigma_{\text{ext}} = \sigma_{\text{abs}} + \sigma_{\text{diff}} \quad (2.16)$$

Afin de réaliser une source locale de chaleur, on cherche à minimiser la contribution de la diffusion au profit de l'effet d'absorption. En se plaçant dans l'approximation quasistatique, valide lorsque le diamètre de la nanoparticule est très inférieur à la longueur d'onde, on peut supposer que la phase du champ électrique oscillant est constante sur toute la nanoparticule. De plus, si on considère cette dernière comme un pur dipôle, on peut écrire la relation suivante [226] :

$$\frac{\sigma_{\text{diff}}}{\sigma_{\text{ext}}} = \frac{\mathcal{V} 4\pi^2 \epsilon_s |\underline{\xi}|^2}{\lambda^3 \text{Im}(\underline{\xi})} \quad (2.17)$$

avec  $\mathcal{V}$  le volume de la nanoparticule métallique,  $\lambda$  la longueur d'onde de l'onde électromagnétique,  $\epsilon_s$  la permittivité du milieu autour de la nanoparticule,  $\underline{\xi}$  le facteur suivant :

$$\underline{\xi} = \frac{\underline{\epsilon}(\omega) - \epsilon_s}{\underline{\epsilon}(\omega) + 2\epsilon_s} \quad (2.18)$$

avec  $\underline{\epsilon}(\omega)$  la permittivité diélectrique du métal. L'équation 2.17 montre que plus le volume  $\mathcal{V}$  de la nanoparticule est petit, plus le phénomène d'absorption prédomine [226] (voir Figure 2.9 (a)). Pour nos expériences, les nanoparticules formant la source de chaleur devront donc être de petites dimensions, typiquement de la dizaine à la centaine de nanomètres.

On doit maintenant se poser la question de la longueur d'onde de résonance du plasmon de surface localisé. Cette longueur d'onde de résonance dépend de plusieurs paramètres, en particulier du rapport d'aspect  $r$  de la nanoparticule et de la polarisation de l'onde lumineuse. En brisant la symétrie de la nanoparticule, la nanoparticule ne possède plus une seule résonance mais au moins deux. Dans ce cas, la polarisation de l'onde électromagnétique incidente est importante et permet de choisir la résonance du plasmon de surface localisé que l'on excite. En choisissant une polarisation de l'onde lumineuse suivant le côté le plus grand de la nanoparticule, il se produit un décalage vers les grandes longueurs d'onde de la position de la résonance (voir Figure 2.9 (b)) et de ce fait, on peut, en choisissant bien l'asymétrie de la particule, avoir une résonance du plasmon de surface

localisé dans la gamme infrarouge comme souhaité [209, 226]. Dans nos expériences, le rapport d'aspect  $r$  est supérieur à 2.

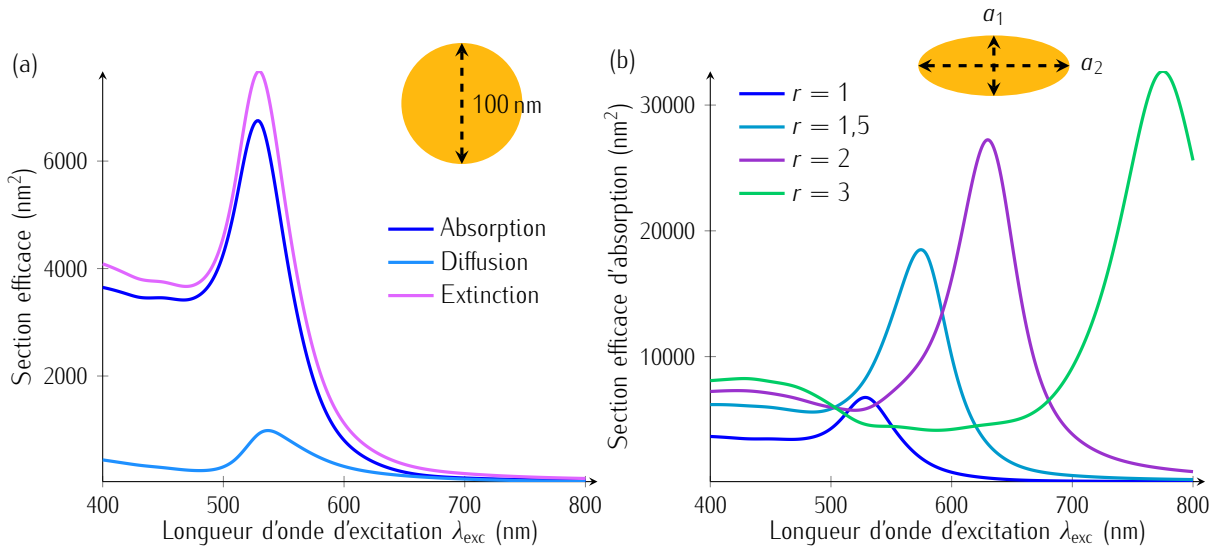


FIGURE 2.9 – (a) Évolution des sections efficaces d'absorption, de diffusion et d'extinction en fonction de la longueur d'onde pour une particule d'or sphérique de 50 nm. (b) Évolution des sections efficaces d'absorption pour des nanoparticules d'or ellipsoïdales de rapport d'aspect  $r = 1.5$ ,  $r = 2$ ,  $r = 3$  ainsi que pour le rapport d'aspect  $r = 1$  (correspondant à la sphère de 50 nm montrée en (a)) avec  $r = \frac{a_2}{a_1}$ . Simulations extraites de la référence [209].

À l'échelle de la nanoparticule, on a expliqué comment optimiser le processus d'absorption afin de générer un effet de chauffage local à l'échelle nanométrique ainsi que les paramètres permettant de contrôler sa longueur d'onde d'excitation. Ces nanoparticules peuvent aussi être disposées en réseau et former une structure beaucoup plus grande que l'on nommera réseau thermoplasmonique dans la suite. Dans ces réseaux, l'agencement entre les nanoparticules est crucial car il permet de contrôler les profils de température produits. En effet, si celles-ci sont trop éloignées les unes des autres, les nanoparticules se comportent de façon indépendante et le chauffage est confiné autour de chaque nanoparticule. En revanche, si on diminue cet espacement, l'effet de chauffage produit devient collectif, permettant de produire des profils de température uniformes sur tout le réseau [226]. Dans le cas d'un réseau régulier à maille carrée formé de nanoparticules de diamètre  $a$  et distantes de  $p$ , on peut montrer que ce régime de chauffage collectif est atteint lorsque  $p^2 \ll 3da$  où  $d$  est le diamètre du faisceau d'excitation. Cette inégalité montre notamment que la taille du spot du faisceau d'excitation  $d$  doit être bien plus grande que l'extension de la structure thermoplasmonique. Dans nos expériences,  $d$  vaut  $10 \mu\text{m}$ , pour des réseaux de dimension maximale de  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ .

En prenant en compte tous ces paramètres, un échantillon, dont le design a été entrepris par R. Tanos [209], a été fabriqué par l'entreprise QNAMI ainsi que L. Le Gratiet, R. Braive et I. Sagnes au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N). Il comprend plusieurs réseaux à maille

rectangulaire de nanopavés en or. Les dimensions typiques de ces réseaux et pavés sont indiquées sur la [figure 2.10](#). Les réseaux ont des dimensions allant de  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  jusqu'à des nanoparticules d'or uniques. Ces réseaux sont disposés autour d'une antenne micro-onde lithographiée en or pour mesurer le spectre de résonance magnétique du centre NV.

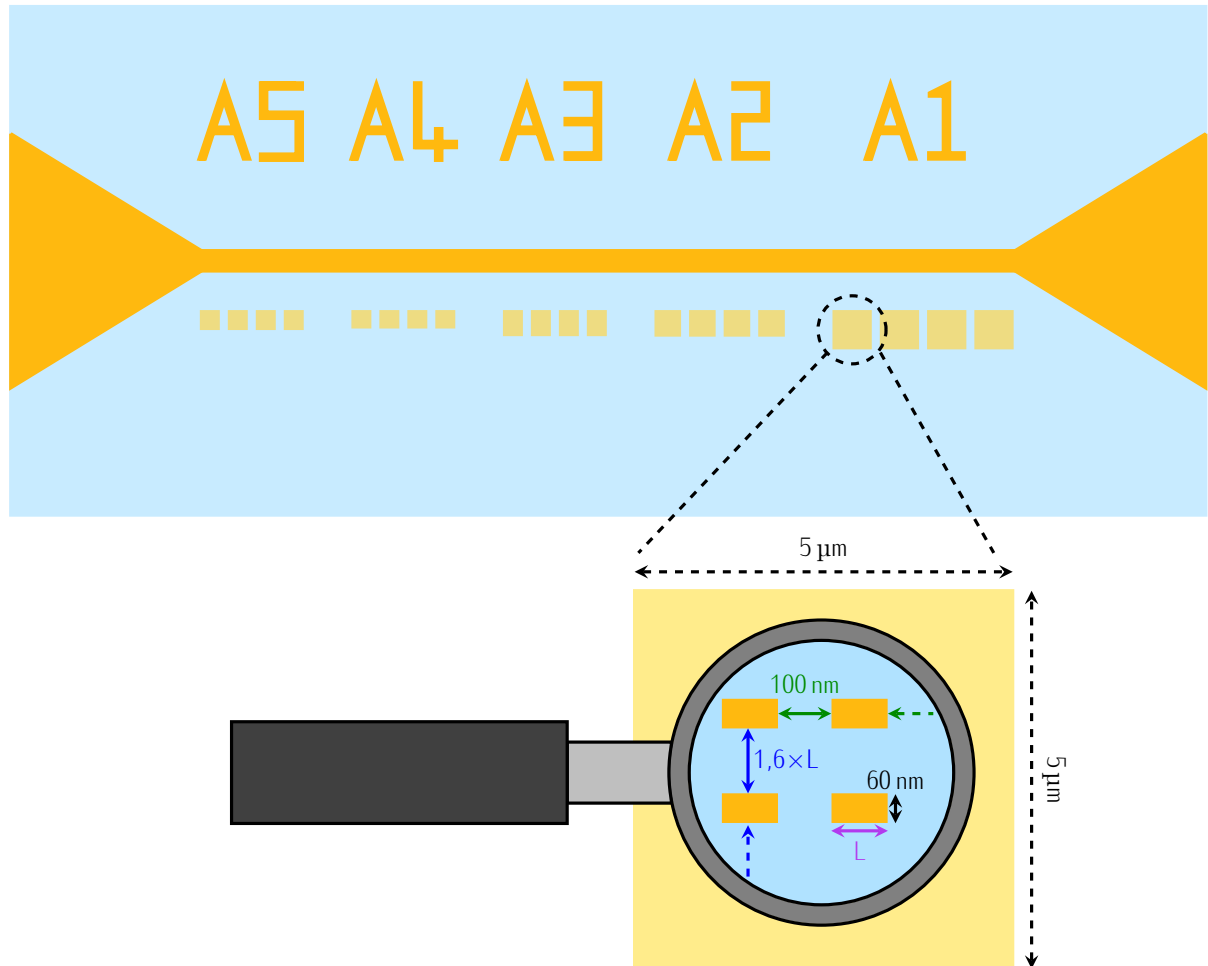


FIGURE 2.10 – Schéma de l'échantillon utilisé. Les réseaux thermoplasmoniques (en jaune clair) sont disposés autour d'une antenne micro-onde en or (en jaune foncé) afin de pouvoir réaliser la mesure du spectre de résonance magnétique. Ils sont déposés sur un substrat de quartz (en bleu) qui a l'avantage de posséder une conductivité thermique très faible ( $\kappa_{\text{quartz}} = 3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ). Autour de l'antenne micro-onde on trouve cinq groupes de réseaux dénotés  $A_i$  ( $i$  allant de 1 à 5). Dans chacun de ces groupes  $A_i$ , quatre réseaux thermoplasmoniques sont déposés. Pour un même groupe  $A_i$ , chaque réseau est formé de nanopavés en or de même dimension suivant une maille rectangulaire (voir zoom en dessous) mais ces dimensions varient d'un réseau à l'autre avec  $L = 125, 135, 140$  et  $145 \text{ nm}$ . De plus, pour chacun des groupes  $A_i$ , les réseaux ont des dimensions différentes. Les groupes A1 et A2 comprennent des réseaux de  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  et  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$  respectivement tandis que les réseaux des groupes A3, A4 et A5 sont formés respectivement de quatre, deux et un nanopavés en or.

Cet échantillon a plusieurs avantages. D'abord, la variation de la taille des nanopavés d'or dans les réseaux de mêmes dimensions permet une variation de la position de la résonance du plasmon de surface localisé. Autrement dit, pour une longueur d'onde d'excitation fixe, l'absorption est modifiée et donc on s'attend à une variation de l'effet de chauffage d'un réseau à l'autre. De plus, le maximum d'absorption de ces nanoparticules d'or se produit pour des longueurs d'onde dans l'infrarouge autour de 830 nm, soit en dehors des plages spectrales d'excitation et de détection du signal des centres NV. Le troisième avantage est que les réseaux de nanopavés, de par leur agencement, permettent de produire un profil de température uniforme sur tout le réseau. Par ailleurs, l'extension spatiale de ce profil est déterminée par la taille du réseau, permettant de sonder la résolution spatiale du capteur sur des sources de chaleur de dimension allant du micron jusqu'à la centaine de nm pour un nanopavé unique. Pour finir, ces structures se trouvent sur un substrat de quartz ayant une conductivité thermique faible ( $\kappa_{\text{quartz}} = 3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) ce qui permet à la structure de maintenir l'effet de chauffage induit lors de l'excitation optique.

### 2.2.2 Configurations d'excitation optique des structures thermoplasmoniques

Afin de générer un effet de chauffage par ces structures thermoplasmoniques, il est nécessaire d'ajouter une excitation infrarouge externe et pour cela, deux configurations expérimentales sont possibles. On peut soit venir exciter les réseaux en incidence rasante sans passer par l'objectif de microscope ou au contraire, acheminer le laser infrarouge via l'objectif de microscope employé pour exciter et détecter les centres NV (voir [Figure 2.11](#)).

L'avantage de la première configuration (voir [Figure 2.11 \(a\)](#)) est de pouvoir dissocier les deux chemins optiques : celui emprunté par le laser vert et le signal et photoluminescence des centres NV (via l'objectif de microscope) et celui emprunté par le laser infrarouge. Cependant, cette configuration présente aussi plusieurs désavantages, compte tenu de la compacité du montage. En effet, l'objectif de microscope a une distance de travail de 1 mm et il convient de recourir à des optiques peu encombrantes pour acheminer le laser infrarouge et de bien choisir l'angle d'incidence afin que l'objectif de microscope n'obstrue pas le trajet du laser infrarouge. On peut, pour cela, acheminer le faisceau infrarouge par une fibre optique combinée à une lentille convergente associée au coupleur de fibre. Dans notre dispositif expérimental, l'angle maximal d'incidence est de  $16^\circ$ . Le spot d'excitation sur la surface de l'échantillon prend alors une forme elliptique de dimension de l'ordre de la dizaine de microns. Si en théorie cette configuration permet d'exciter les structures thermoplasmoniques, en pratique l'absence de visualisation du faisceau d'excitation rend difficile son positionnement sur les

structures et ne permet pas d'avoir une connaissance précise de ses dimensions effectives sur la surface de l'échantillon.

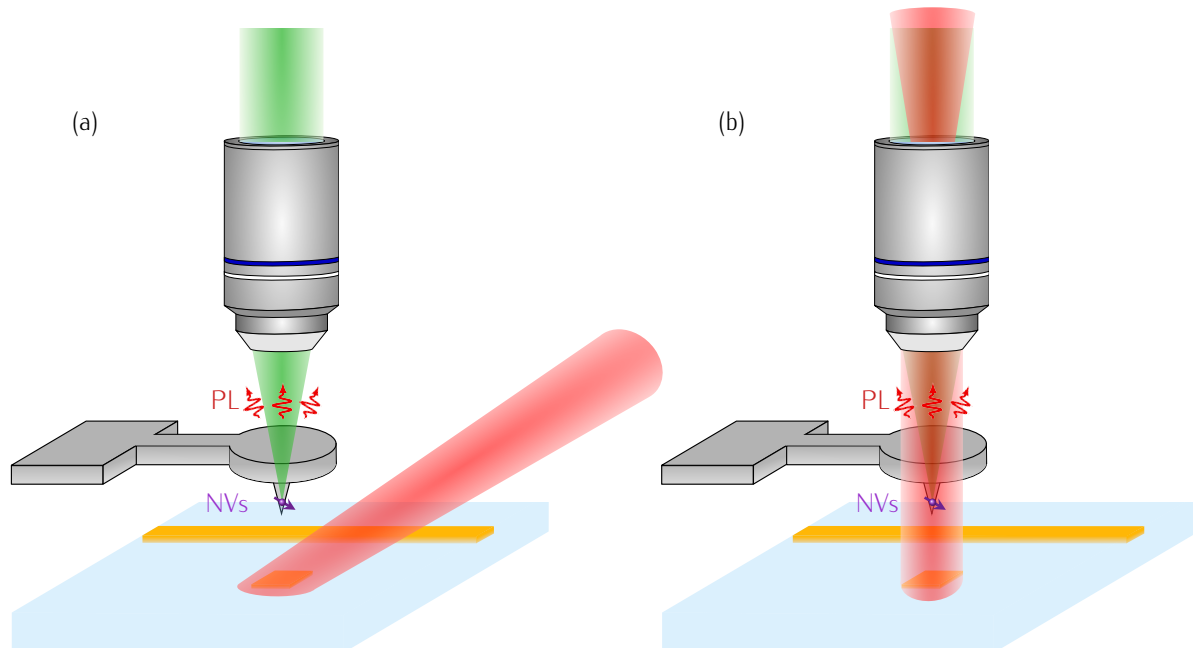


FIGURE 2.11 – Schéma des deux configurations d'excitation possibles des structures thermoplasmoniques par le faisceau infrarouge. (a) Configuration suivant une excitation en incidence rasante par le côté. (b) Configuration expérimentale suivant une excitation via l'objectif de microscope de focalisation du laser d'excitation vert et de collection du signal de luminescence des centres NV tandis que le faisceau infrarouge est focalisé sur l'entrée de l'objectif de microscope pour produire un spot large d'excitation sur la surface de l'échantillon. Dans les deux configurations, le laser vert collimaté passe par l'objectif de microscope puis est focalisé à la surface de la pointe en diamant où se trouve l'ensemble de centres NV. La photoluminescence des centres NV est aussi collectée par ce même objectif de microscope.

Dans la seconde configuration (voir [Figure 2.11 \(b\)](#)), on se place dans une architecture d'excitation en champ large du faisceau infrarouge via un objectif de microscope. On rappelle, en effet, que pour obtenir des profils de température uniformes, il faut que la taille du spot du faisceau infrarouge soit bien plus grande que l'extension de la structure thermoplasmonique. Dans cette architecture, l'excitation infrarouge emprunte le même chemin optique que le laser vert via l'objectif de microscope et à travers la pointe en diamant. Cependant, si le laser vert est focalisé sur la pointe en diamant, le faisceau infrarouge est focalisé à l'entrée de l'objectif de microscope, afin de produire un faisceau en champ large sur la surface de l'échantillon. Le détail du montage optique est décrit sur la [figure 2.12](#). Dans cette configuration, lors d'une cartographie, l'échantillon est déplacé sous la pointe mais le faisceau infrarouge est, lui, fixe. Afin d'assurer une excitation efficace des structures thermoplasmoniques avec un faisceau plus large que les dimensions de la structure, quelle que soit la position de l'échantillon sous l'objectif, on a opté pour un montage optique assurant un diamètre

du faisceau d'excitation d'environ  $10\ \mu\text{m}$ . Dans la suite, la puissance surfacique maximum utilisée est de  $\mathcal{P}_{\text{surfique}} \approx 570\ \mu\text{W}\ \mu\text{m}^{-2}$  sans endommager les structures.

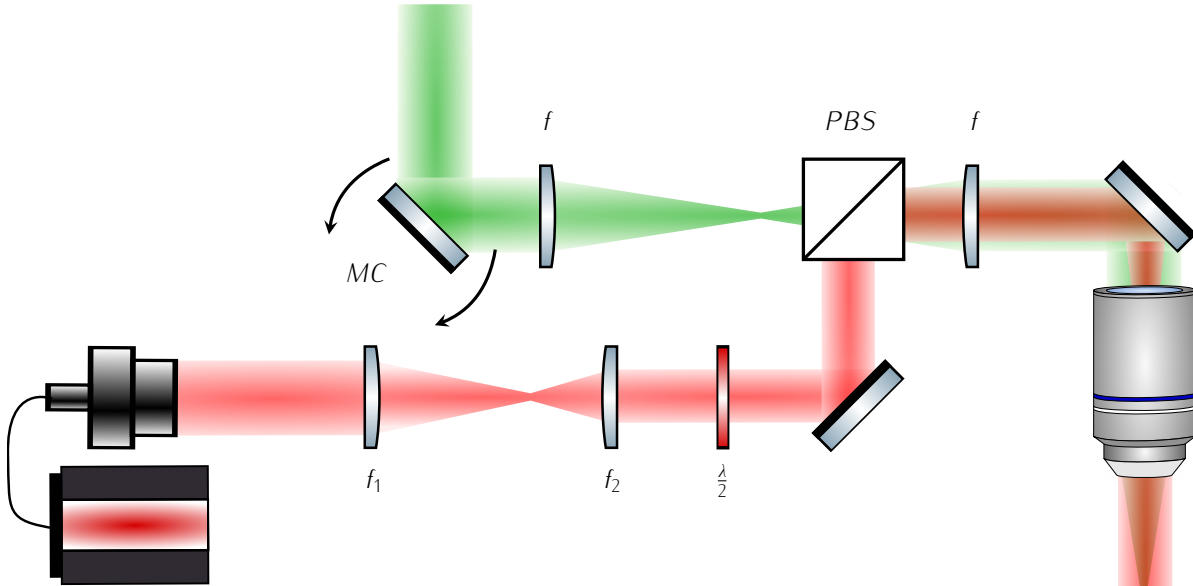


FIGURE 2.12 – Schéma du chemin optique du laser vert et du faisceau infrarouge. Le laser vert passe par un miroir contrôlable (MC), permettant de balayer le laser vert au niveau de la pointe en diamant. Le laser vert passe ensuite par deux lentilles de focale  $f$  de 250 mm. Sur le chemin entre les deux lentilles est placé un cube séparateur de faisceau polarisé (PBS) qui combine le laser vert et le faisceau infrarouge. Le laser vert est collimaté à l'entrée de l'objectif de microscope puis focalisé sur les centres NV. En ce qui concerne le faisceau infrarouge, en sortie de fibre, il passe par un système de lentilles  $f_1$  et  $f_2$ . Ces deux lentilles permettent de contrôler la taille du faisceau infrarouge à la surface de l'échantillon. La puissance infrarouge est contrôlée par une lame demi-onde ( $\frac{\lambda}{2}$ ) ainsi que par le cube séparateur de faisceau polarisé (PBS). Le faisceau infrarouge passe ensuite dans la lentille de focale 250 mm qui focalise ce dernier à l'entrée de l'objectif. On a ainsi un faisceau infrarouge large à la surface de l'échantillon. En utilisant un couple de lentilles de focales  $f_1 = 100\ \text{mm}$  et  $f_2 = 25\ \text{mm}$ , le diamètre du faisceau infrarouge à la surface de l'échantillon est d'environ  $10\ \mu\text{m}$ .

### 2.2.3 Analyse des structures thermoplasmoniques de $5 \times 5\ \mu\text{m}^2$

Par la suite, afin de sonder les échauffements induits par les structures thermoplasmoniques, deux pointes optimisées pour la mesure de la température ont été utilisées que l'on nommera pointe A et pointe B. Les mesures sur ces pointes montrent parfois un terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$  visible sur le spectre de résonance magnétique. Dans la suite, le terme de clivage axial  $D$  est donnée par le



centre d'une unique Lorentzienne dans le cas où le terme  $\mathcal{E}$  n'est pas observé ou par la moyenne des centres des deux Lorentziennes dans le cas où le terme  $\mathcal{E}$  est observable.

Avant de cartographier les échauffements induits par les structures thermoplasmoniques, on réalise la mesure du spectre de résonance magnétique lorsque l'on allume ou non le faisceau infrarouge sans exciter la structure thermoplasmonique, en rétractant la pointe loin de la surface de l'échantillon à une distance d'environ  $2\ \mu\text{m}$ . L'objectif est de vérifier si la présence du faisceau laser infrarouge affecte le spectre de résonance magnétique. Cette mesure a mis en évidence que, contre toute attente, on a un effet de chauffage de la pointe en diamant induit par le faisceau infrarouge. En effet, lorsque l'on compare le spectre de résonance magnétique en présence du faisceau infrarouge à la puissance  $P_{\text{IR}} = 45\ \text{mW}$  avec celui de référence à  $P_{\text{IR}} = 0\ \text{mW}$  (voir Figure 2.13 (c)), on observe une variation du terme de clivage axial  $D$  de  $\Delta D' = D - D_{\text{IR}} = 1,28 \pm 0,13\ \text{MHz}$ . Ce décalage  $\Delta D'$  correspond à une variation de température  $\Delta T' = 18,3 \pm 1,9\ \text{K}$ . Cet effet de chauffage par le faisceau infrarouge, bien que non négligeable, peut en premier lieu être considéré comme constant pour une puissance infrarouge donnée.

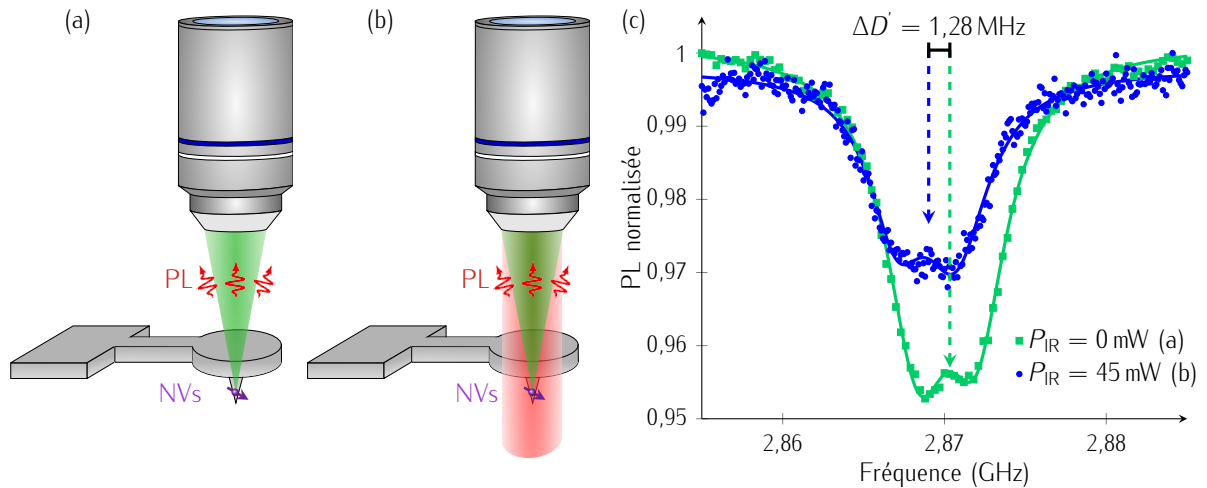


FIGURE 2.13 – Schéma de la configuration expérimentale pour la mesure du spectre de résonance magnétique sans le faisceau infrarouge ( $P_{\text{IR}} = 0\ \text{mW}$ ) (a) et avec le faisceau infrarouge à la puissance  $P_{\text{IR}} = 45\ \text{mW}$  (b), la pointe étant rétractée loin de la surface de l'échantillon. (c) Comparaison des spectres de résonance magnétique enregistrés dans les configurations (a) et (b) respectivement en vert et en bleu. Dans le cas présent, c'est la pointe B qui est utilisée.

Afin de prendre en compte l'*off-set* sur la mesure de la température induit par l'échauffement du capteur par le faisceau infrarouge, la variation de température induite par la structure thermoplasmonique est déduite en comparant la température mesurée au-dessus de la structure thermoplasmonique et celle mesurée au-dessus du substrat de quartz loin de toute nanosource de chaleur. Tout d'abord, on se concentre sur les réseaux de dimensions  $5 \times 5\ \mu\text{m}^2$ . Pour déduire l'échauffement induit par le réseau, on engage la pointe en diamant très proche de la surface de l'échantillon et on compare les

spectres de résonance magnétique lorsque la pointe est au-dessus de la structure thermoplasmonique et lorsqu'elle est au-dessus du quartz loin de toute structure thermoplasmonique. On notera respectivement  $D_{\text{structure}}$  et  $D_{\text{quartz}}$ , les valeurs issues de la mesure de  $D$  dans ces deux configurations respectivement (voir Figure 2.14 (a)-(b)). Comme on peut le voir sur la figure 2.14 (c), on observe bien un effet de chauffage induit par la structure thermoplasmonique puisque pour une puissance infrarouge fixe à  $P_{\text{IR}} = 33 \text{ mW}$ , on mesure une variation  $\Delta D = D_{\text{structure}} - D_{\text{quartz}}$  de  $2,47 \pm 0,16 \text{ MHz}$ , ce qui correspond à une variation de température  $\Delta T = 35,3 \pm 2,3 \text{ K}$ .

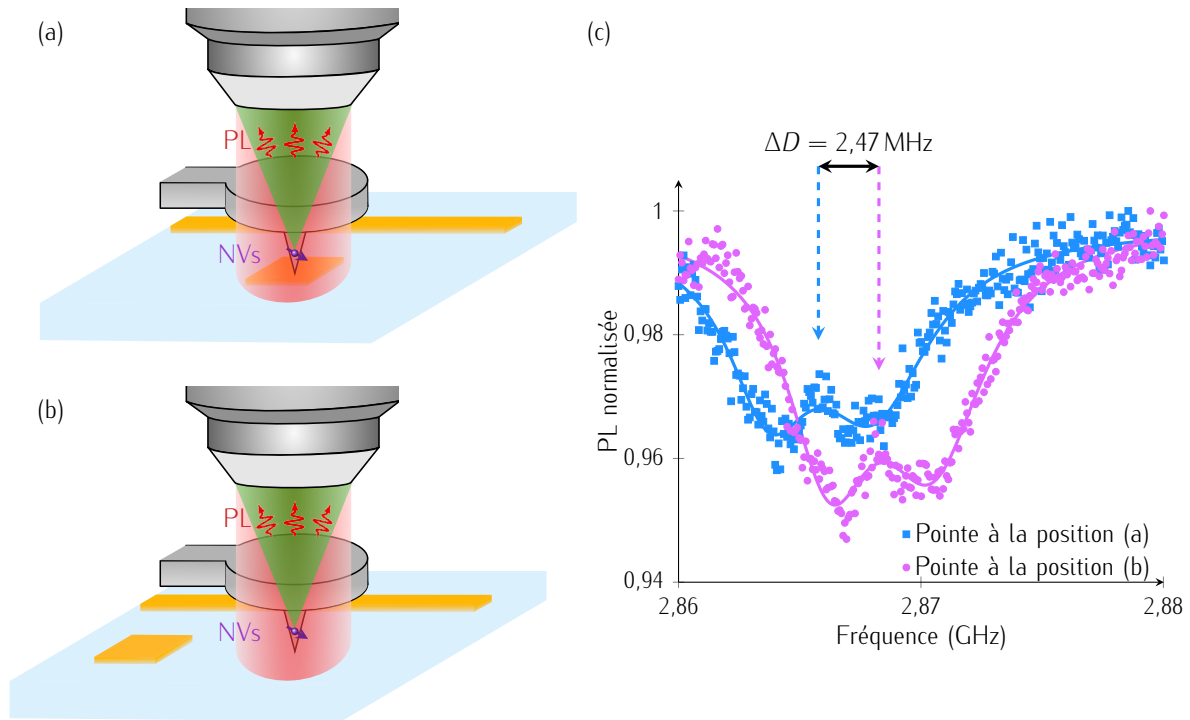


FIGURE 2.14 – (a) Schéma de la configuration expérimentale pour la mesure du spectre de résonance magnétique lorsque la pointe est au-dessus et très proche de la structure thermoplasmonique, à une distance de quelques nm de la surface de l'échantillon. (b) Schéma de la configuration expérimentale pour la mesure du spectre de résonance magnétique lorsque la pointe est au-dessus du substrat de quartz, à une distance de quelques nm de la surface de l'échantillon. (c) Comparaison des spectres de résonance magnétique enregistrés dans les configurations (a) et (b) respectivement en bleu et en violet pour une puissance infrarouge  $P_{\text{IR}} = 33 \text{ mW}$ . Dans le cas présent, c'est la pointe A qui est utilisée.

Cette mesure a été conduite pour différentes puissances du faisceau infrarouge. D'après l'équation 2.14, on s'attend à une évolution linéaire de la variation de température en fonction de l'intensité du faisceau d'excitation infrarouge  $\mathcal{I}$ . C'est bien ce que l'on observe sur la figure 2.15. La variation de la température  $\Delta T$  augmente bien linéairement avec  $P_{\text{IR}}$ . Cette mesure a été conduite sur trois réseaux de surface  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  mais formés de nanopavés de dimensions différentes. On remarque que l'échauffement induit diffère d'un réseau à l'autre. Dans ces expériences, la longueur d'onde du faisceau d'excitation est fixée à 830 nm. Les variations d'échauffement d'un réseau à l'autre, proviennent du

désaccord, plus ou moins important, entre la longueur d'onde du faisceau d'excitation et la longueur d'onde de résonance de la section efficace d'absorption des nanopavés en or formant les réseaux. Ce désaccord est le plus faible pour le réseau dénoté structure 1.

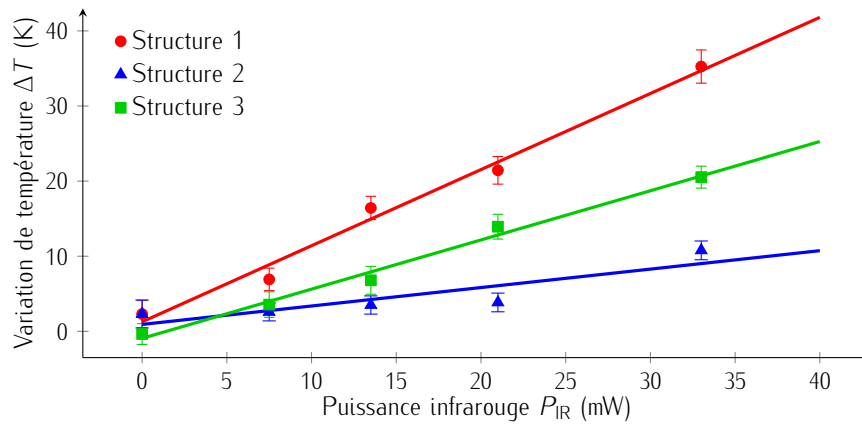


FIGURE 2.15 – (a) Évolution de la variation de température  $\Delta T$  en fonction de la puissance infrarouge  $P_{IR}$  déterminée par la différence  $\Delta D = D_{\text{quartz}} - D_{\text{structure}}$ , mesurée lorsque la distance pointe-échantillon est de quelques nm. La mesure a été faite sur trois réseaux de surface  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  mais formés de nanopavés de dimensions différentes, dénotés Structure 1, 2 et 3. Dans le cas présent, c'est la pointe A qui est utilisée.

Afin de vérifier que la procédure de calibration par la mesure de la température en deux points permet d'être quantitatif, la variation de la température en fonction de la puissance du faisceau infrarouge a été mesurée sur une même structure dans six configurations expérimentales différentes, correspondant à six positions différentes de la pointe. Cette mesure est réalisée lorsque la pointe est rétractée au-dessus de la structure thermoplasmonique (voir Figure 2.16 (a)), rétractée au-dessus du quartz (voir Figure 2.16 (b)), engagée sur la structure thermoplasmonique (voir Figure 2.16 (c)), engagée sur le quartz (voir Figure 2.16 (d)), en contact direct avec la structure (voir Figure 2.16 (e)) et en contact direct avec le quartz (voir Figure 2.16 (f)). Lorsque la pointe est engagée sur l'échantillon, elle se trouve à quelques nm de la surface tandis que lorsqu'elle est en contact, cette distance est nulle. Pour faire cela, on arrête la boucle de rétroaction du microscope à force atomique et on colle l'échantillon à la pointe. En ce qui concerne les configurations (c) à (d), elles correspondent à celles décrites dans le paragraphe précédent. La calibration de la variation de température présentée en figure 2.16 (h)–(j) est cependant différente : elle est faite en comparant la valeur de  $D$  mesurée à celle obtenue en absence de faisceau infrarouge. L'analyse de ces courbes nous permet de tirer plusieurs conclusions.

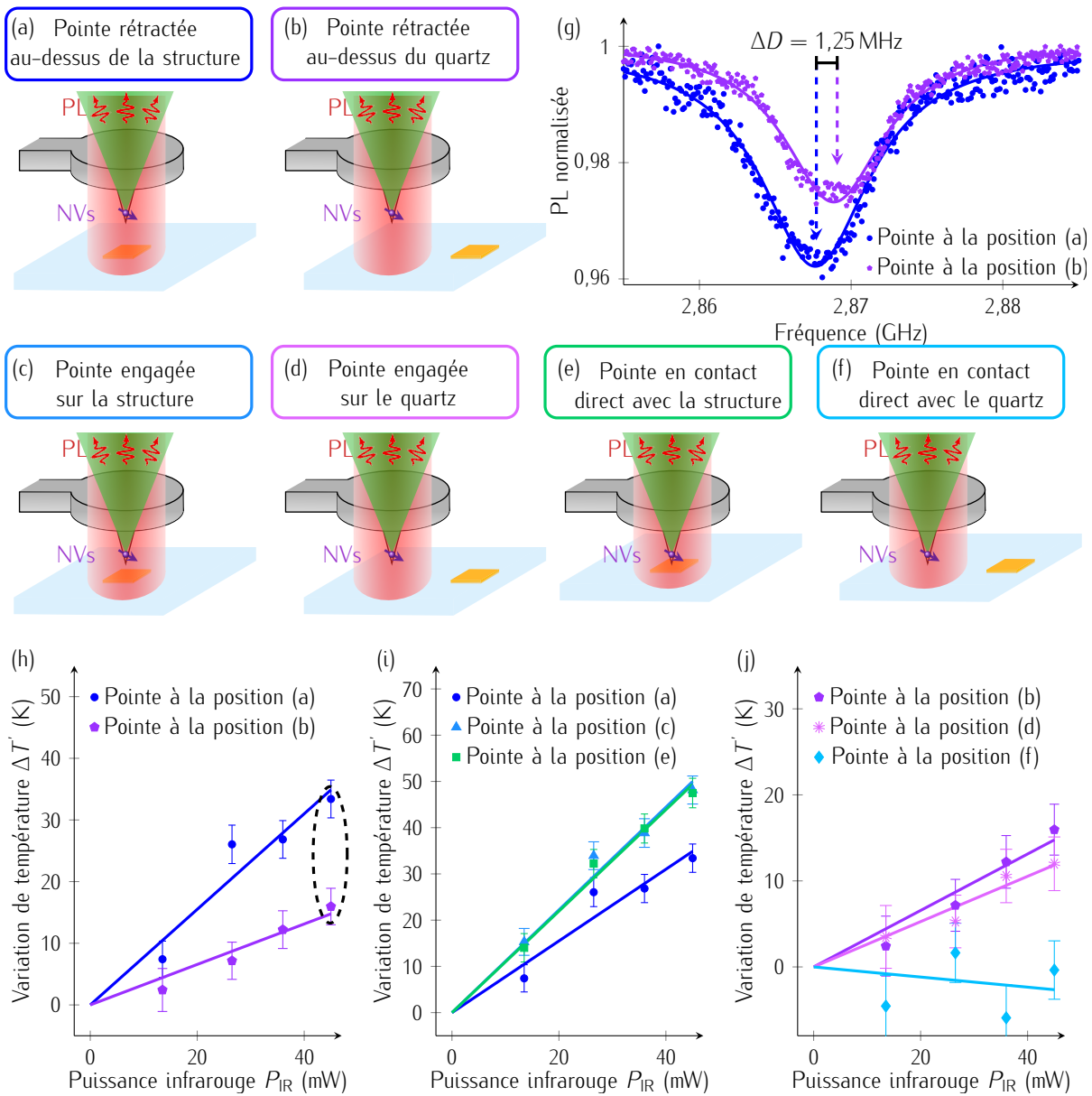


FIGURE 2.16 – Schéma des différentes configurations expérimentales suivant la position de la pointe en diamant : lorsque la pointe est rétractée au-dessus de la structure thermoplasmonique (a), rétractée au-dessus du quartz (b), engagée sur la structure thermoplasmonique (c), engagée sur le quartz (d), en contact direct avec la structure (e) et en contact direct avec le quartz (f). (g) Comparaison des spectres de résonance magnétique lorsque la pointe est rétractée au-dessus du quartz (en bleu) et lorsque la pointe est rétractée au-dessus de la structure (en violet) à la puissance  $P_{IR} = 45 \text{ mW}$  (cercle en pointillé de (h)). (h) Évolution de la variation de la température  $\Delta T'$  lorsque la pointe est rétractée au-dessus de la structure (position (a)) et rétractée au-dessus du quartz (position (b)). (i) Évolution de la variation de la température  $\Delta T'$  lorsque la pointe est rétractée au-dessus de la structure (position (a)), engagée sur la structure (position (c)) et en contact avec la structure (position (e)). (j) Évolution de la variation de la température  $\Delta T'$  lorsque la pointe est rétractée au-dessus du quartz (position (b)), engagée sur le quartz (position (d)) et en contact avec le quartz (position (f)). Toutes les mesures de  $\Delta T'$  ici sont réalisées en comparant la valeur de  $D$  mesurée avec la valeur de  $D$  mesurée sans le faisceau infrarouge. Dans le cas présent, c'est la pointe B qui est utilisée.

Lorsque la pointe est rétractée, on constate un échauffement plus important lorsque la pointe est au-dessus de la structure thermoplasmonique : pour une puissance  $P_{IR} = 45 \text{ mW}$ , les variations de la température mesurées diffèrent de  $17,9 \pm 1,0 \text{ K}$  (voir [Figure 2.16 \(g\)-\(h\)](#)). Dans cette configuration, on aurait pu s'attendre à ne voir aucune différence de température, que l'on soit au-dessus de la structure thermoplasmonique ou au-dessus du quartz. Cette variation est importante et pourrait s'expliquer par plusieurs phénomènes tels qu'un transfert de chaleur depuis le réseau thermoplasmonique vers la pointe, la pointe n'étant qu'à une distance de  $2 \mu\text{m}$  de la surface, et/ou une variation de la puissance infrarouge ressentie par la pointe par réflexion ou diffusion du faisceau sur la surface. Les variations de température diffèrent aussi suivant la hauteur de la pointe. Lorsqu'on se place au-dessus des structures thermoplasmoniques, on constate une augmentation de la variation de la température lorsqu'on approche la pointe de la surface, augmentation provenant de l'échauffement local induit par le réseau (voir cercles et triangles sur la [figure 2.16 \(i\)](#)). En revanche, lorsque la pointe est engagée ou en contact, la variation de température mesurée ne change pas (voir triangles et carrés sur la [figure 2.16 \(i\)](#)). Ce comportement est très différent lorsque la mesure est reproduite loin de toute structure chauffante au-dessus du quartz. On note que la variation de température reste similaire lorsque la pointe est rétractée ou engagée, mais qu'elle chute lorsque la pointe est en contact avec le substrat (voir les losanges sur la [figure 2.16 \(j\)](#)). Ceci semble indiquer une forte dissipation de la chaleur, induite par le faisceau infrarouge, depuis la pointe vers le substrat en quartz lorsque la pointe est en contact, ce qui aboutit à une thermalisation de la pointe avec le substrat en quartz. Cet effet de thermalisation, a priori favorable pour réaliser une mesure quantitative de la température, n'apparaît cependant pas de façon aussi évidente lorsque la pointe se trouve au-dessus de la structure thermoplasmonique, puisque la température mesurée est identique que la pointe soit à quelques nanomètres de la surface ou en contact.

On voit donc que de nombreux canaux de transfert de chaleur co-existent : conduction ou convection depuis la structure thermoplasmonique vers la pointe, conduction depuis la pointe vers l'échantillon. La co-existence de ces mécanismes remet en cause la rigueur de notre analyse quantitative de l'échauffement induit par le réseau pour prendre en compte l'*off-set*, au travers d'une simple comparaison de la température au-dessus et loin de la source de chaleur.

On peut cependant toujours réaliser des cartographies qualitatives. Pour cela, la pointe est engagée sur l'échantillon et déplacée le long des structures thermoplasmoniques. On a ainsi mesuré le profil de température le long d'un des réseaux, différent de celui étudié pour les mesures présentées sur la [figure 2.16](#). Lors de cette mesure, la puissance du faisceau infrarouge est constante et vaut  $P_{IR} = 45 \text{ mW}$ . Comme montré sur la [figure 2.17 \(a\)](#) et la [figure 2.17 \(b\)](#), la structure thermoplasmonique peut être repérée sur l'échantillon par des mesures topographiques à l'aide du microscope à force atomique ou par la cartographie du niveau de photoluminescence des centres NVs exalté par réflexion

ou diffusion au-dessus des réseaux. Sur ces deux images, une oscillation est observée et provient d'un bruit sur la boucle de rétroaction du microscope à force atomique.

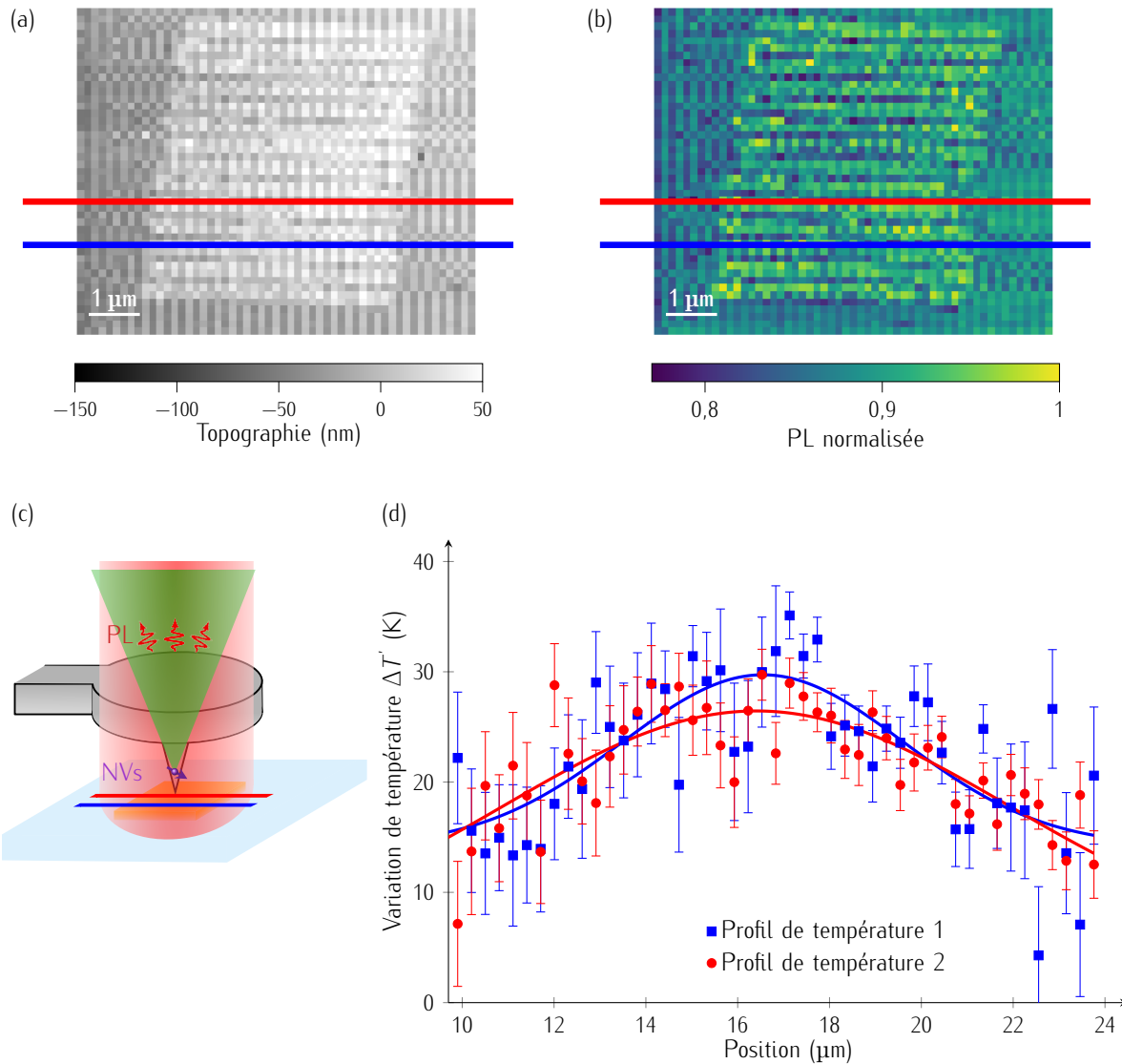


FIGURE 2.17 – (a) Topographie de la structure thermoplasmonique  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ . (b) Carte de photoluminescence des centres NVs de la pointe. (c) Schéma de la configuration de mesure des deux profils de température montrés par les deux traits en bleu et en rouge. (d) Évolution de la variation de température  $\Delta T'$  tout au long des traits bleu et rouge indiqués en (c) avec une puissance infrarouge constante de  $P_{\text{IR}} = 45 \text{ mW}$ . Dans le cas présent, c'est la pointe B qui est utilisée.

Deux coupes de la variation de température  $\Delta T'$  le long de cette structure sont ensuite mesurées, suivant les lignes indiquées en bleu et rouge. Les profils de température sont reportés sur la [figure 2.17 \(d\)](#). Pour les deux mesures, lorsque la pointe est engagée loin du réseau thermoplasmonique, la variation de la température  $\Delta T'$  est d'environ 14 K. Cette variation correspond bien à la variation mesurée dans l'étude précédente (voir [Figure 2.16 \(g\)](#)). Lorsque la pointe est engagée au-dessus du réseau thermoplasmonique, on observe bien, comme attendu, une augmentation de la variation de

température provenant de l'effet de chauffage local. On peut noter que l'amplitude de la variation de température mesurée, de l'ordre de 30 K, est plus faible que celle mesurée dans l'expérience précédente (environ 50 K). Cette différence peut s'expliquer par le plus grand désaccord entre la longueur d'onde du faisceau infrarouge et la longueur d'onde de résonance de cette structure thermoplasmonique.

## 2.2.4 Origine de l'effet de chauffage du capteur de température

La détection et cartographie des échauffements induits par les réseaux thermoplasmoniques ont révélé les limites de cette approche pour tenter de quantifier la résolution spatiale de l'imageur. Le problème majeur est l'*off-set* de la mesure provenant de l'échauffement de la pointe par le faisceau infrarouge, *off-set* qui dépend de la position de la pointe par rapport à l'échantillon mais aussi de la puissance du faisceau infrarouge. Or, le diamant est a priori transparent dans l'infrarouge et aucun échauffement ne devrait être observé. Afin de mieux comprendre l'origine de cet échauffement, nous avons réalisé plusieurs expériences, notamment pour vérifier l'impact d'une configuration d'excitation en champ large sur l'absorption des faisceaux laser par le capteur.

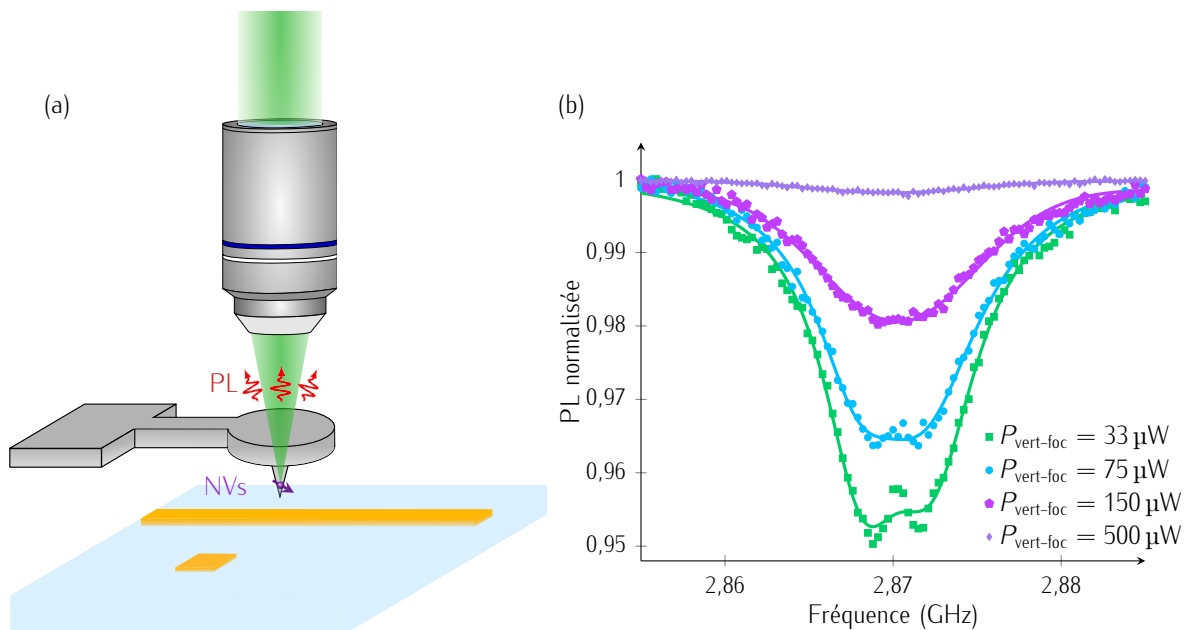


FIGURE 2.18 – (a) Schéma de la configuration expérimentale pour la mesure du spectre de résonance magnétique pour différentes puissances du laser vert focalisé  $P_{\text{vert-foc}}$ . (b) Comparaison des spectres de résonance magnétique pour différentes puissances du laser vert. Dans le cas présent, c'est la pointe A qui est utilisée.

L'étude de l'impact de la configuration en champ large a été menée en utilisant le laser vert d'excitation des centres NV. Dans la configuration expérimentale usuelle, ce laser est focalisé sur la pointe en diamant. La [figure 2.18](#) montre quatre spectres de résonance magnétique obtenus pour

quatre différentes puissances du laser vert focalisé allant de  $33 \mu\text{W}$  à  $500 \mu\text{W}$  (soit une puissance surfacique de l'ordre de  $\sim 100 \mu\text{W} \mu\text{m}^{-2}$ ). On observe comme attendu, une chute du contraste et un élargissement des raies (voir [Paragraphe 2.1.2](#)) avec la puissance laser, sans cependant de déviation de la valeur de  $D$ . En revanche, lorsque l'acheminement du laser vert se fait en champ large par focalisation du laser vers à l'entrée de l'objectif de microscope, on observe un comportement très différent (voir [Figure 2.19](#)). Dans cette expérience, le diamètre du spot du laser vert est ajusté pour atteindre environ  $10 \mu\text{m}$ . La mesure du spectre de résonance magnétique pour différentes puissances du laser montre une variation du terme de clivage axial de  $D$  et une augmentation de la température de  $\Delta T' = 5,2 \pm 2,9 \text{K}$  pour une puissance laser de  $2 \text{mW}$  et de  $\Delta T' = 27,6 \pm 3,6 \text{K}$  pour une puissance laser de  $6,5 \text{mW}$  (soit une puissance surfacique de l'ordre de  $\sim 10 \mu\text{W} \mu\text{m}^{-2}$ ).

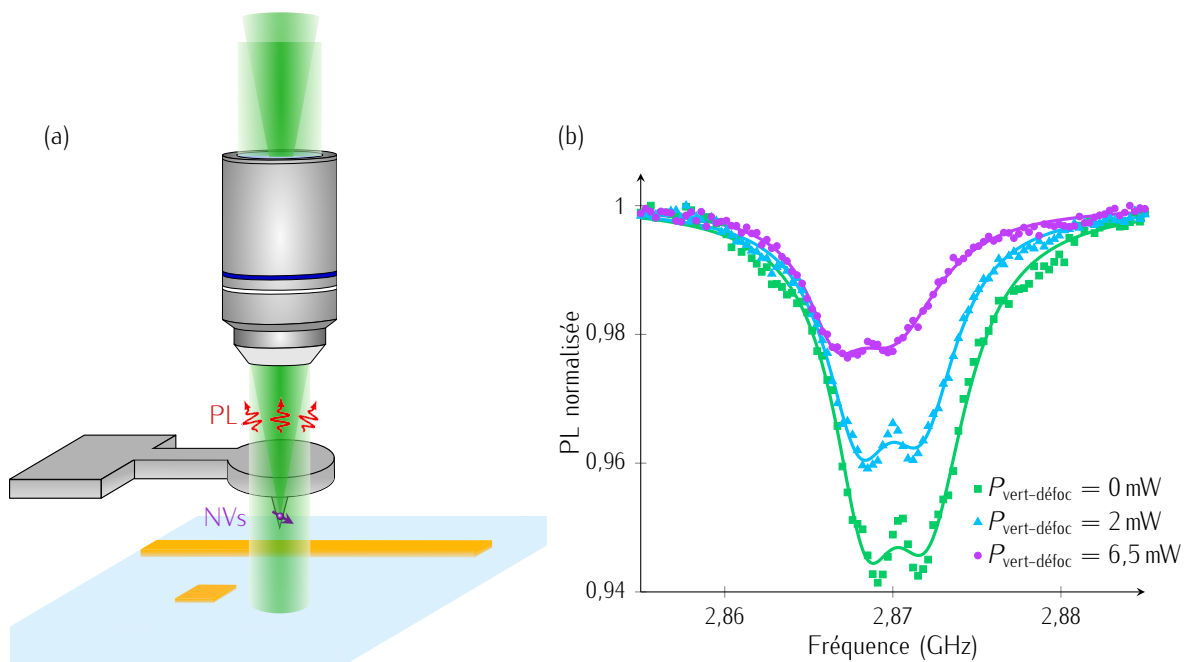


FIGURE 2.19 – (a) Schéma de la configuration de mesure pour différentes puissances du laser vert en champ large  $P_{\text{vert-défoc}}$ . (b) Comparaison des spectres de résonance magnétique pour différentes puissances du laser vert. Dans le cas présent, c'est la pointe A qui est utilisée.

Ces expériences montrent qu'un effet de chauffage est mesuré sur la pointe en diamant lorsque la pointe est éclairée en champ large, que ce soit par le laser vert ou le laser infrarouge. En effet, le volume d'excitation du capteur est alors bien plus grand, incluant l'ensemble de la pointe et une part du cantilever. Ceci laisse penser que l'échauffement pourrait être induit par l'absorption des faisceaux d'illumination par le biais de défauts, dépôts ou résidus se trouvant sur le cantilever ou sur les flancs de la pointe.

En conclusion, si les structures thermoplasmoniques s'annonçaient prometteuses pour évaluer les performances de l'imageur, en particulier la résolution spatiale, l'absorption résiduelle par le



capteur des faisceaux d'excitation en champ large induit un échauffement perturbant la mesure. Cette perturbation est dépendante de la position de la pointe et de la puissance d'excitation, de façon insuffisamment contrôlable pour assurer une mesure quantitative des échauffements. Une excitation en incidence rasante des structures thermoplasmoniques pourrait pallier à ce problème mais la compacité du montage optique ne permet pas un contrôle précis de la position du faisceau d'excitation et de son extension à la surface de l'échantillon. On s'est alors de fait tourné vers une autre architecture de nanosources de chaleur ne nécessitant pas une excitation optique externe : des constriction nanométriques dans des lignes de courant, générant des échauffements locaux par effet Joule.

## 2.3 Nanosources de chaleur formées par des constriction dans une ligne d'or

Afin de tester la limite de la résolution spatiale du capteur de température, un autre type de structure chauffante reposant sur l'effet Joule a été envisagé. Ces nanosources sont constituées de constriction dans des lignes de courant en or. Ces sources produisent aussi un champ magnétique. Dans cette partie, je vais d'abord présenter le protocole de mesure pour dissocier le champ magnétique généré par la ligne de courant de la variation de température puis par la suite, je vais décrire nos expériences pour extraire la variation de température de ces nanosources de chaleur.

### 2.3.1 Propriétés thermiques des constriction dans des lignes de courant en or

Dans le but de réaliser une nanosource de chaleur, deux géométries simples sont envisageables. La première d'entre elles est une ligne de courant avec un coude abrupt modifiant la trajectoire des électrons. Dans ce cas, au niveau de ces changements de direction, la densité de courant est modifiée et on s'attend à des effets de chauffage plus importants au niveau des bords du coude [174]. Cette géométrie, bien qu'intéressante, demande d'avoir des lignes de courant avec des virages abrupts, qui, par conséquent, éloigne la ligne de l'antenne micro-onde. Ceci a pour effet de réduire de manière importante l'excitation micro-onde sur le capteur de température et de ce fait, rend plus compliqué la mesure du spectre de résonance magnétique. La seconde géométrie se base, quant à elle, sur une diminution drastique locale de la largeur de la ligne de courant. Dans ce cas, au niveau de ces zones (constriction), la résistance augmente et l'effet Joule est d'autant plus important. Cela permet de maintenir la ligne de courant à une distance raisonnable de l'antenne micro-onde tout en ayant une source de chaleur localisée. C'est sur cette géométrie que l'on a focalisé notre attention

dans cette partie. Nos simulations portant sur des lignes de courant en or présentant localement une constriction de largeur  $\mathcal{L}_c$  et traversées par un courant  $\mathcal{I}_e$ , montrent, comme attendu, que la variation de température augmente lorsque la largeur de la constriction  $\mathcal{L}_c$  diminue (voir figure 2.20 (a)-(b)).

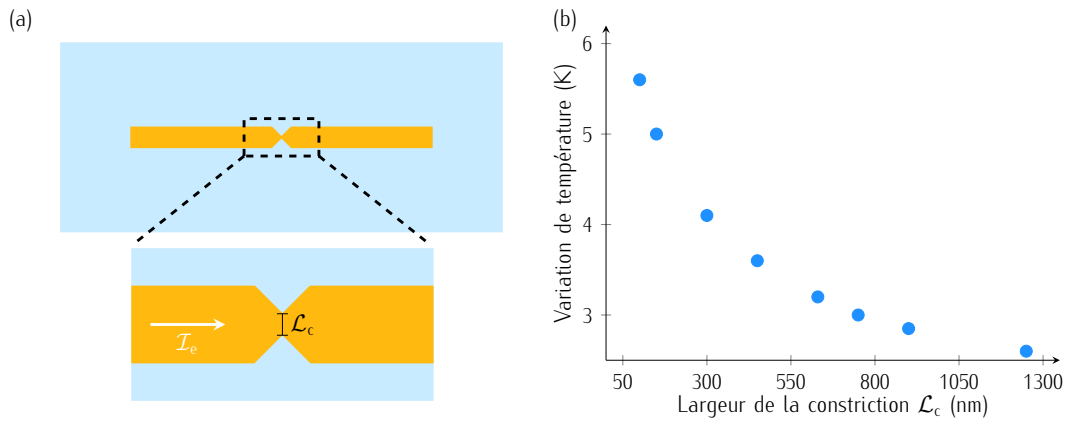


FIGURE 2.20 – (a) Schéma de la géométrie de la nanosource de chaleur reposant sur une constriction de largeur  $\mathcal{L}_c$  dans une ligne d'or de largeur  $\mathcal{L}$  égale à  $10\ \mu\text{m}$ , d'épaisseur  $100\ \text{nm}$  lithographiée sur un substrat de quartz de basse conductivité thermique ( $\kappa_{\text{quartz}} = 3\ \text{W m}^{-1}\ \text{K}^{-1}$ ). (b) Simulations numériques de l'évolution de la variation de température en fonction de la largeur de la constriction  $\mathcal{L}_c$  pour un courant fixe  $\mathcal{I}_e = 10\ \text{mA}$ .

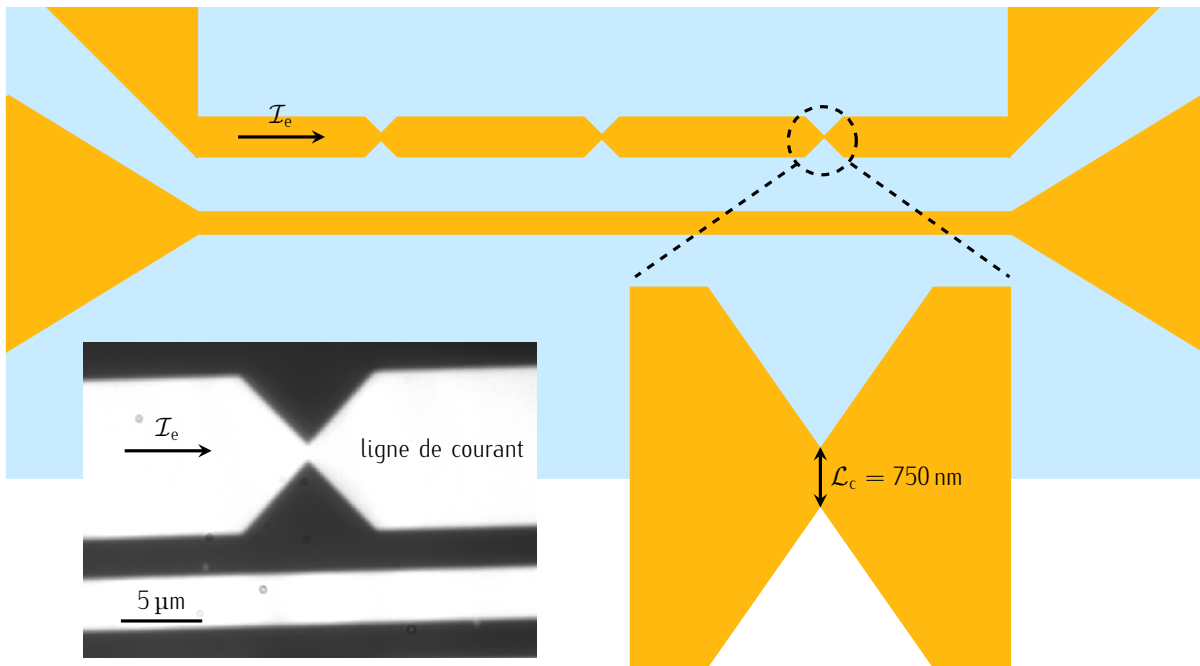


FIGURE 2.21 – Schéma de l'échantillon utilisé dans cette partie. Une ligne de courant constituée de constriction de trois largeurs différentes  $\mathcal{L}_c$  ( $750\ \text{nm}$ ,  $950\ \text{nm}$  et  $1250\ \text{nm}$ ) est disposée à proximité d'une antenne micro-onde en or (en jaune foncé) afin de pouvoir réaliser la mesure du spectre de résonance magnétique. La ligne de courant et l'antenne sont déposées sur un substrat de quartz (en bleu) qui a l'avantage de posséder une conductivité thermique très faible ( $\kappa_{\text{quartz}} = 3\ \text{W m}^{-1}\ \text{K}^{-1}$ ). Une image au microscope optique enregistrée au niveau d'une des constriction est présentée.

Afin de réaliser des mesures de la variation de température au niveau de ces constriction, un échantillon a été fabriqué par l'entreprise *QNAMI*. Sur cet échantillon, une ligne de courant en or, d'épaisseur de 100 nm et de largeur de 10  $\mu\text{m}$ , est déposée sur un substrat de quartz. Elle comprend trois constriction de différentes largeurs  $\mathcal{L}_c = 750$  nm,  $\mathcal{L}_c = 950$  nm et  $\mathcal{L}_c = 1250$  nm. Elle est disposée à une distance de 3  $\mu\text{m}$  de l'antenne micro-onde de largeur égale à 3  $\mu\text{m}$  (voir [Figure 2.21](#)).

### 2.3.2 Protocole de mesure simultané de la température et du champ magnétique

Outre produire un échauffement local, le passage du courant dans la ligne en or produit un champ magnétique qui sera ressenti par le centre NV. Pour comprendre l'effet de la température et du champ magnétique sur le spectre de résonance magnétique, on peut revenir sur les niveaux d'énergie décrivant les états de spin du centre NV dans l'état fondamental et analyser l'impact de la température ainsi que du champ magnétique parallèle à l'axe de quantification du centre NV, noté  $B_{\text{NV}}$ . Dans le cas où les champs magnétiques transverses restent inférieurs à quelques mT et si la contribution du terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$  est négligeable, le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  est défini par (voir [Chapitre 1](#)) :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = DS_z^2 + \gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}} S_z \quad (2.19)$$

Lorsque le champ magnétique parallèle à l'axe de quantification du centre NV,  $B_{\text{NV}}$ , est nul, les niveaux d'énergie  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  sont séparés par le terme de clivage axial  $D$ . À température ambiante, ce terme vaut  $D \approx 2,87$  GHz. Cela donne lieu à une seule raie de résonance sur le spectre de résonance magnétique (voir [Figure 2.22 \(a\)](#)). Si on ajoute un champ magnétique  $B_{\text{NV}}$ , il en résulte une levée de la dégénérescence des états  $m_s = \pm 1$  et dans ce cas, la fréquence de transition entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = -1$  est différente de celle entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ . Ces fréquences sont respectivement égales à  $D - \gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$  et  $D + \gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$ . Il en résulte deux raies de résonances correspondant aux deux transitions qui sont séparées par  $\Delta f = f_+ - f_- = 2\gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$  (voir [Figure 2.22 \(b\)](#)). Si, sous ce même champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  on augmente la température, cela va entraîner un décalage des fréquences de résonance vers les basses fréquences mais l'écart entre les deux raies de résonance  $\Delta f$  ne va pas être modifié (voir [Figure 2.22 \(c\)](#)). Tout cela montre que si on mesure la position centrale  $\bar{f} = \frac{(f_+ + f_-)}{2}$ , on détecte une variation de température tandis que l'écart entre les deux raies de résonances  $\Delta f$  est directement relié au champ magnétique  $B_{\text{NV}}$ .

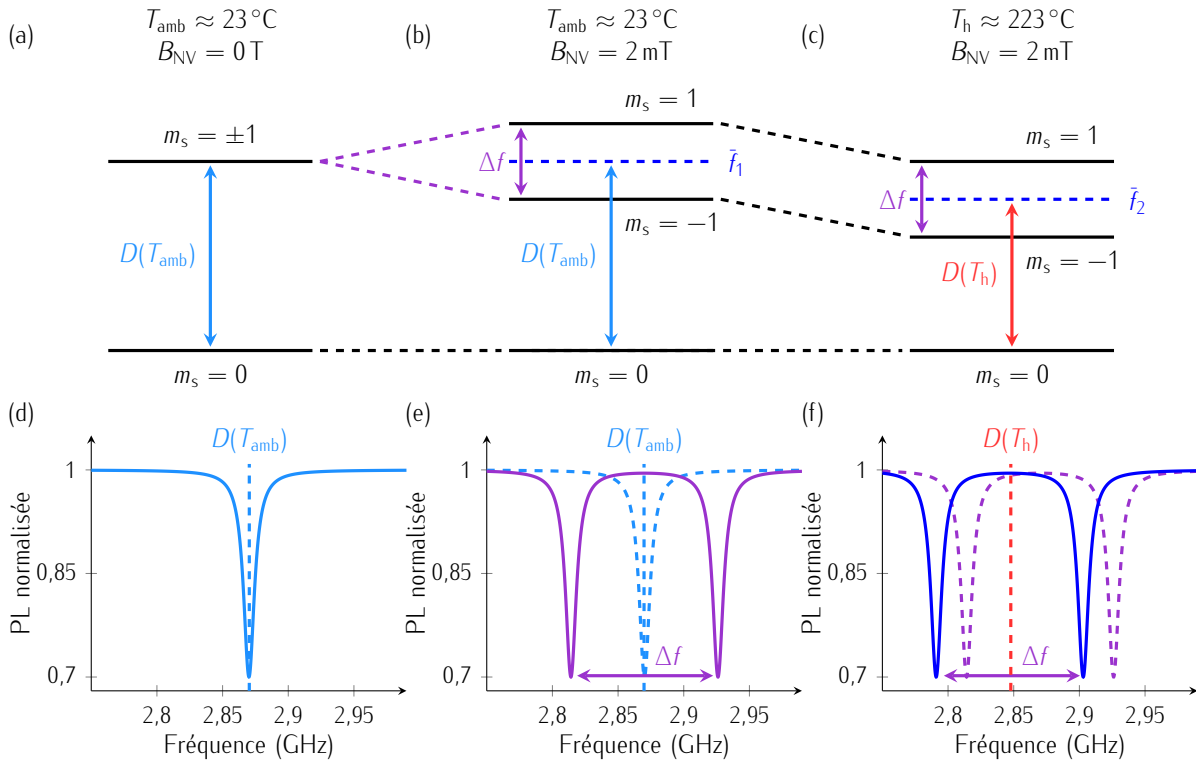


FIGURE 2.22 – (a)-(c) Niveaux d'énergie du spin électronique dans l'état fondamental à température ambiante sous champ magnétique nul (a), en présence d'un champ magnétique parallèle à l'axe du centre NV et à température ambiante (b) et en présence d'un champ magnétique parallèle à l'axe du centre NV et sous échauffement (c). (d)-(e) Spectres de résonance magnétique associés. La mesure de la position centrale  $\bar{f} = \frac{(f_+ + f_-)}{2}$  permet de retirer l'information de la température tandis que la mesure de l'écart entre les raies de résonance  $\Delta f = (f_+ - f_-)$  renseigne sur l'évolution du champ magnétique parallèle à l'axe de quantification du centre NV. Les fréquences  $f_-$  et  $f_+$  correspondent aux transitions entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = -1$  et entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$  respectivement.

Afin d'accéder à ces deux grandeurs physiques  $\bar{f}$  et  $\Delta f$ , on peut adapter les modes d'imagerie *FullB* et *Dual-IsoB* décrits dans le Chapitre 1. Ces deux modes d'imagerie seront appelés respectivement mode *FullBT* et mode *IsoBT*. Le mode d'imagerie *FullBT* repose sur la mesure complète du spectre de résonance magnétique à chaque pixel afin d'avoir la position des deux raies de résonance d'intérêt. Ce mode permet une mesure quantitative de ces deux grandeurs, mais il reste lent. De la même manière que le mode *Dual-IsoB*, le mode *IsoBT* permet une mesure qualitative mais bien plus rapide. Il consiste à mesurer la photoluminescence à seulement trois fréquences distinctes bien choisies pour chaque pixel. La position de ces trois fréquences est notée sur la figure 2.23. On notera alors  $\mathcal{S}(f_1)$ ,  $\mathcal{S}(f_2)$  et  $\mathcal{S}(f_3)$  le signal de photoluminescence obtenu aux trois fréquences  $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$  respectivement. Dans ce contexte, on remarque que  $\Delta_{S_T} = \mathcal{S}(f_1) - \mathcal{S}(f_3)$  est exclusivement lié à la variation de température alors que  $\Delta_{S_B} = \mathcal{S}(f_1) - \mathcal{S}(f_2)$  provient uniquement de l'évolution du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  (voir Figure 2.23).

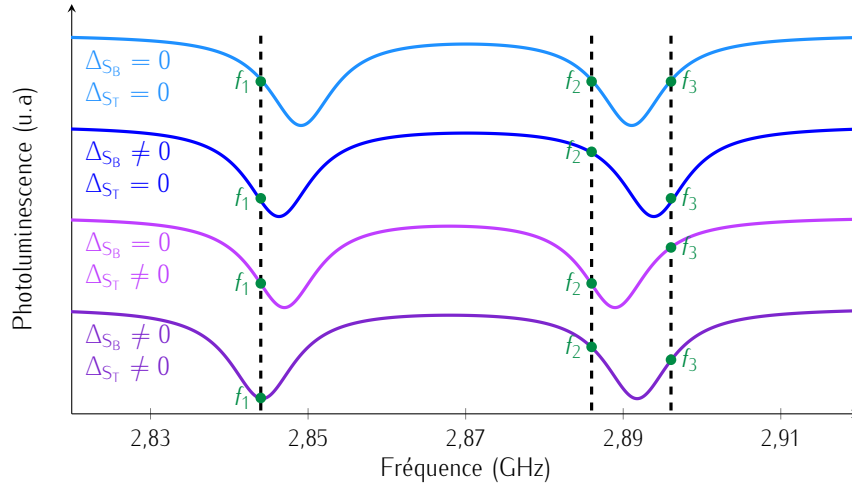


FIGURE 2.23 – Représentation schématique de la lecture qualitative du champ magnétique et de la température simultanément en mode *IsoBT*. Ce mode repose sur la mesure de la photoluminescence à trois fréquences différentes  $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$ . On note  $\mathcal{S}(f_1)$ ,  $\mathcal{S}(f_2)$  et  $\mathcal{S}(f_3)$  le signal de photoluminescence obtenu à ces trois fréquences  $f_1$ ,  $f_2$  et  $f_3$  respectivement. Les grandeurs  $\Delta S_T = \mathcal{S}(f_1) - \mathcal{S}(f_3)$  et  $\Delta S_B = \mathcal{S}(f_1) - \mathcal{S}(f_2)$  sont alors uniquement reliées à la variation de la température et du champ magnétique parallèle à l'axe du centre NV respectivement.

Afin de mettre en place ce protocole, on rappelle que les pointes optimisées pour la thermométrie hébergent une dizaine de centres NV présentant quatre orientations possibles équiprobables. Si l'effet de la température sur le spectre de résonance magnétique est identique pour les quatre familles, l'impact du champ magnétique se traduit par des dédoublements des raies distincts suivant chaque famille, fonction de la projection du champ magnétique selon l'axe des centres NV. Réaliser la mesure sur l'ensemble des quatre familles se heurte alors à la difficulté de suivre l'évolution de chaque doublet. Une stratégie pour pallier à cette difficulté consiste à expérimentalement isoler une seule de ces orientations et effectuer la mesure sur une seule des quatre familles. Pour cela, la mesure est réalisée en appliquant un champ magnétique externe aligné suivant l'axe d'une seule famille de centres NV, ici on suppose par exemple que l'on est orienté suivant l'axe  $[111]$ . On relève alors quatre raies de résonance dans le spectre de résonance magnétique (voir Figure 2.24 (b)). Les raies de résonance externes correspondent au signal provenant de cette famille tandis que les deux raies centrales correspondent aux trois autres familles alignées suivant les axes  $[1\bar{1}\bar{1}]$ ,  $[\bar{1}1\bar{1}]$  et  $[\bar{1}\bar{1}1]$ , pour lesquelles la projection du champ magnétique externe suivant leurs axes de quantifications est identique. La mesure simultanée de  $\bar{f}$  et  $\Delta f$  est ensuite conduite en mesurant le signal provenant des centres NV suivant l'axe  $[111]$  uniquement. Pour cela, la pointe est engagée au niveau de la constriction (de largeur  $\mathcal{L}_c = 750$  nm sur la figure 2.24 (b)) et le spectre de résonance magnétique est enregistré afin d'extraire la position des deux raies de résonance par un ajustement lorentzien. À partir de ces mesures, on peut déterminer les évolutions de la position centrale  $\bar{f}$  ainsi que l'écart entre les deux raies de résonance  $\Delta f$  en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ . Les résultats sont reportés sur la

figure 2.24 (c)-(d) pour une constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 750$  nm. On remarque une augmentation linéaire de l'écart entre les deux raies de résonance  $\Delta f$  en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ . Ceci est attendu puisque le champ magnétique généré par la ligne de courant évolue linéairement avec le courant  $\mathcal{I}_e$ . On peut extraire l'évolution du champ  $B_{NV}$  en fonction du courant par un ajustement linéaire et on trouve  $\frac{dB_{NV}}{d\mathcal{I}_e} = 0,43 \pm 0,02$  mT mA<sup>-1</sup>. En revanche, on remarque que la position centrale  $\bar{f}$  augmente aussi avec le courant, contrairement à ce qui était attendu dans le cas d'une augmentation locale de la température. Cette évolution s'explique en prenant en compte la contribution perpendiculaire  $B_{\perp}$  du champ magnétique produit par la ligne de courant, comme expliqué dans la suite.

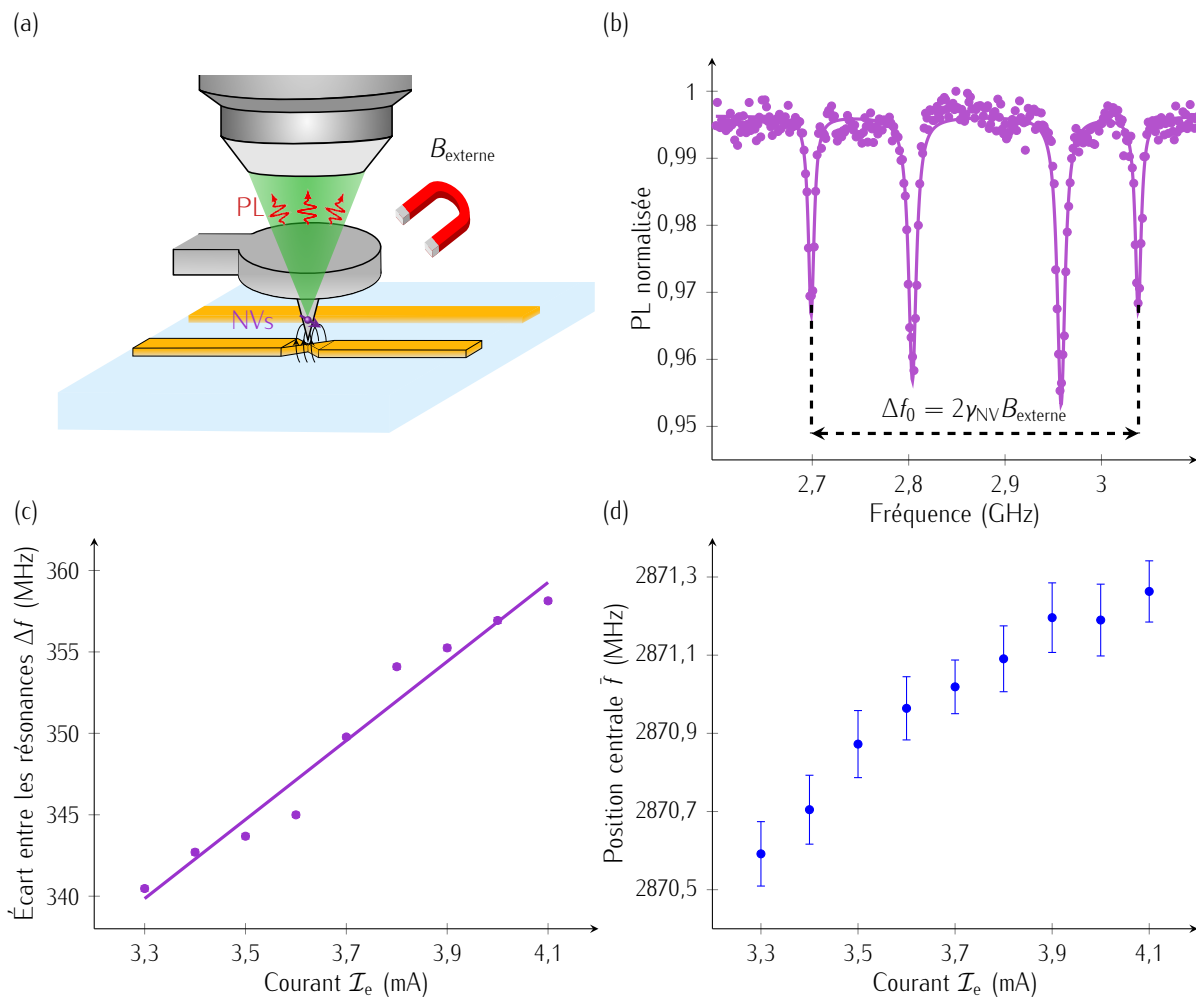


FIGURE 2.24 – (a) Schéma de la configuration expérimentale de mesure. La pointe optimisée pour la température est engagée sur la constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 750$  nm. Un aimant externe est aligné le long de l'une des quatre orientations. On suppose ici que c'est suivant l'axe [111] du diamant. (b) Spectre de résonance magnétique de référence enregistré en absence de courant électrique ( $\mathcal{I}_e = 0$  A) et en présence d'un champ magnétique externe suivant l'axe [111]. On peut extraire la valeur du champ magnétique externe considéré comme exclusivement parallèle à l'axe de quantification de la famille d'intérêt  $B_{NV_{\text{ext}}} = B_{\text{total}_{\text{ext}}} = 6,064 \pm 0,004$  mT. (c) Évolution de l'écart entre les résonances  $\Delta f$  en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ . Un ajustement linéaire permet d'extraire la pente  $\frac{dB_{NV}}{d\mathcal{I}_e} = 0,43 \pm 0,02$  mT mA<sup>-1</sup>. (d) Évolution de la position centrale  $\bar{f}$  en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ .

L'impact de la composante perpendiculaire du champ magnétique  $B_{\perp}$  sur les raies de résonance a été détaillé dans le [Chapitre 1](#). En incluant l'impact de la composante perpendiculaire du champ magnétique, on rappelle que le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  décrivant la physique de l'état fondamental peut s'écrire :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = DS_z^2 + \gamma_{\text{NV}} B_z S_z + \mathcal{E}(S_x^2 - S_y^2) + \gamma_{\text{NV}} (B_x S_x + B_y S_y) \quad (2.20)$$

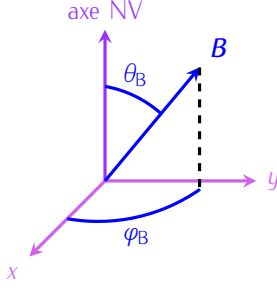


FIGURE 2.25 – Définition des angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  entre l'axe du centre NV et le champ magnétique  $\mathbf{B}$ .

avec  $B_x$  et  $B_y$  les composantes du champ magnétique dans le plan perpendiculaire de l'axe de quantification du centre NV caractérisé par l'angle  $\varphi_B$  ainsi que  $B_z$  caractérisé par l'angle  $\theta_B$  (voir [Figure 2.25](#)). On rappelle que  $B_{\text{NV}} = B_z$  et  $B_{\perp} = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}$ .

En résolvant cet Hamiltonien, on peut montrer que lorsque la composante perpendiculaire du champ magnétique est supérieure à plusieurs mT, l'effet Zeeman devient asymétrique (voir [Chapitre 1](#)). L'évolution de la position de la raie de résonance n'est alors plus linéaire avec le champ magnétique et cette évolution diffère pour chacune des deux raies de résonance. Ceci se traduit par une évolution de la position centrale  $\bar{f}$  vers les hautes fréquences lorsque le champ magnétique augmente.

Afin de vérifier que l'augmentation de  $\bar{f}$  provient de la présence d'un champ magnétique transverse important dans nos expériences, nous avons simulé l'amplitude du champ produit par la ligne de courant lorsqu'elle est parcourue par le courant  $\mathcal{I}_e$ . Le champ magnétique ressenti par le centre NV est alors la somme du champ magnétique externe (d'amplitude égale à  $B_{\text{total,ext}} = 6,064 \pm 0,004$  mT, mesurée en absence de courant, et de composante transverse nulle) et du champ magnétique  $B_{\text{total}}$  produit par la ligne de courant, ayant à la fois une composante parallèle (notée  $B_{\text{NV}}$ ) et perpendiculaire (notée  $B_{\perp}$ ). On rappelle que dans ces pointes optimisées pour la mesure de la température, les centres NV sont délocalisés du bout de la pointe pour réduire les interactions de surface et garantir des longs temps de cohérences. La distance entre les centres NV et la surface de l'échantillon est d'environ  $d_{\text{NV}} = 200$  nm. La simulation numérique du champ magnétique produit par la ligne de courant et ressenti par les centres NV nous indique qu'à une hauteur de vol  $d_{\text{NV}}$  d'environ 200 nm, la variation du champ magnétique total généré par une constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 750$  nm en fonction de l'amplitude du courant  $\mathcal{I}_e$ , est de  $\frac{dB_{\text{total}}}{d\mathcal{I}_e} = 0,66 \pm 0,06$  mT mA<sup>-1</sup>. L'erreur ici indiquée rend compte de l'incertitude expérimentale sur la position latérale de la pointe par rapport à la position de la constriction (avec une précision d'au mieux 500 nm) et sur la distance de vol des centres NV (avec une précision d'au mieux 20 nm).

On remarque que cette variation du champ magnétique total simulé avec le courant ( $\frac{dB_{\text{total}}}{d\mathcal{I}_e} = 0,66 \pm 0,06$  mT mA<sup>-1</sup>) est plus élevée que la variation du champ magnétique mesurée dans nos expériences ( $\frac{dB_{\text{NV}}}{d\mathcal{I}_e} = 0,43 \pm 0,02$  mT mA<sup>-1</sup>). Ceci indique que les centres NV ressentent bien un

champ magnétique perpendiculaire non négligeable. En extrayant l'angle  $\theta = 49 \pm 7^\circ$  entre le champ magnétique généré au niveau de la constriction et l'axe de quantification du centre NV, on peut déterminer l'amplitude du champ magnétique perpendiculaire  $B_\perp$  généré par la constriction pour n'importe quel courant  $\mathcal{I}_e$ . Pour un courant  $\mathcal{I}_e = 3 \text{ mA}$ , l'amplitude  $B_\perp$  est de 1,5 mT, confirmant que le régime de mesure correspond au régime pour lequel l'effet Zeeman commence à devenir asymétrique. Ceci se traduit par un décalage vers les hautes fréquences de la position centrale  $\bar{f}$ .

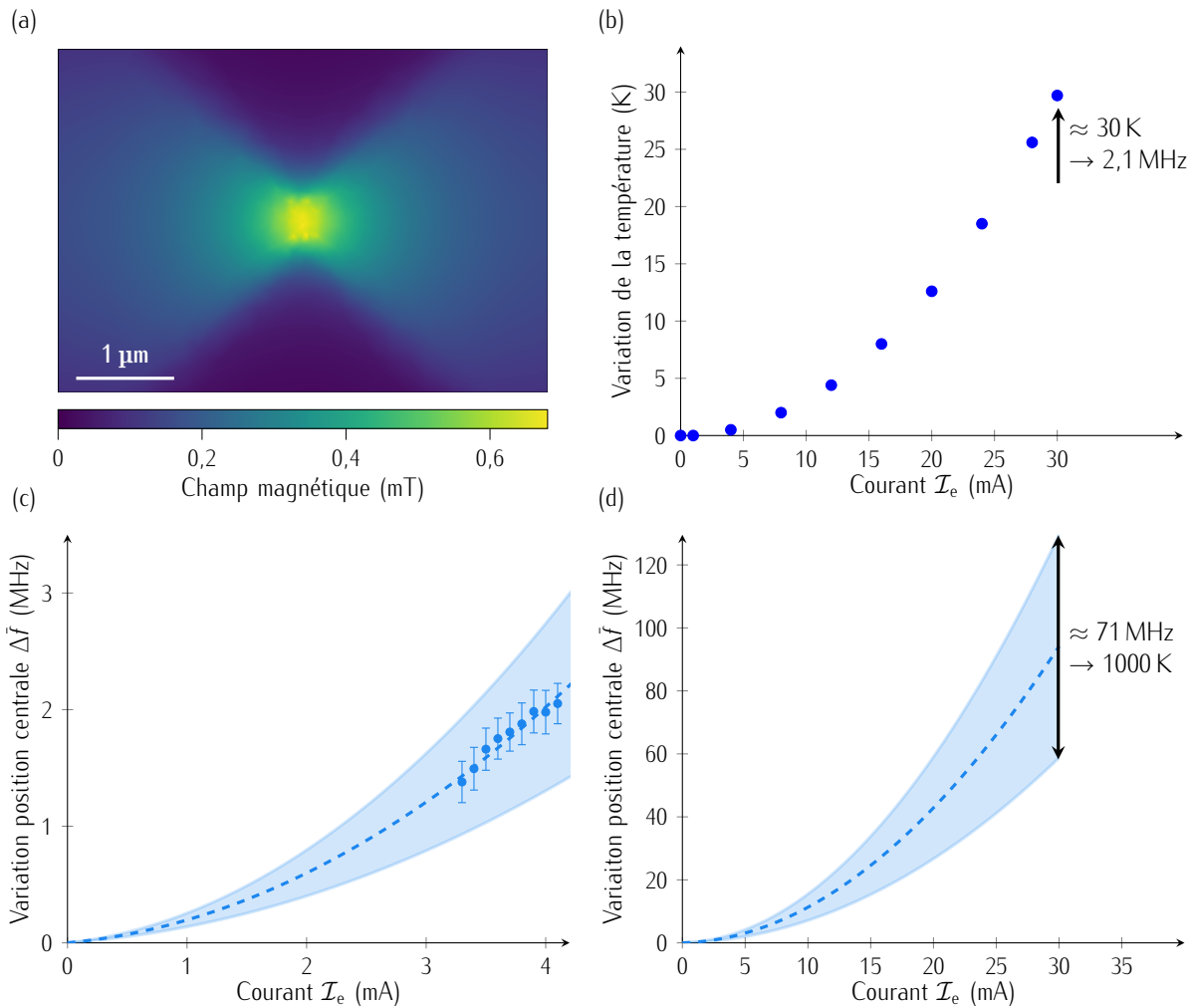


FIGURE 2.26 – (a) Carte simulée numériquement du champ magnétique total généré par la constriction de largeur  $\mathcal{L}_e = 750 \text{ nm}$  pour un courant  $\mathcal{I}_e = 1 \text{ mA}$  et une distance de vol  $d_{\text{NV}} = 200 \text{ nm}$  (distance entre les centres NV à la constriction). (b) Simulation numérique de l'évolution de la variation de température en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ . (c) Simulation numérique de la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  induite par le champ magnétique perpendiculaire en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ . (d) Prédiction de la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  pour des courants  $\mathcal{I}_e$  suffisants pour induire un effet de chauffage substantiel au niveau de la constriction. Les barres d'erreurs proviennent des incertitudes expérimentales sur les positions latérales et verticales des centres NV.



On peut cependant tenter d'extraire la température locale au niveau de la constriction, à partir de la connaissance de la valeur de  $B_{\perp}$ . La variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  induite par le champ perpendiculaire est alors estimée en diagonalisant le Hamiltonien  $\mathcal{H}$  (voir [équation 2.20](#)). La différence entre cette variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  calculée et celle obtenue expérimentalement peut alors être associée à la variation de température. Nos simulations indiquent que pour observer un effet de chauffage mesurable, il conviendrait d'appliquer des courants de plusieurs dizaines de mA, bien supérieurs aux courants jusqu'ici appliqués (de 4 mA induisant une variation de température d'au plus 1 K (voir [Figure 2.26 \(b\)](#)). De plus, le calcul de  $\Delta\bar{f}$  lié au champ perpendiculaire s'accompagne d'une erreur importante, du fait des incertitudes expérimentales sur la position latérale et verticale des centres NV : pour un courant  $\mathcal{I}_e = 30$  mA, cette erreur estimée est d'environ 71 MHz. Elle se traduit par une erreur sur l'estimation de la température de 1000 K, alors que la variation de température attendue est de seulement 30 K environ (voir [Figure 2.26 \(d\)](#)).

Il apparaît de fait que les forts champs magnétiques transverses produits par la ligne de courant ne permettent pas d'accéder à la valeur de la température. Une des limitations principales provient de l'incertitude sur la valeur du champ magnétique transverse, provenant de l'incertitude expérimentale sur la position des centres NV par rapport à la constriction. Pour pallier à ce problème, nous avons exploré une autre stratégie s'appuyant sur une cartographie du champ magnétique afin d'obtenir une mesure plus précise du champ magnétique produit par la ligne de courant. Cette stratégie est décrite dans la sous-partie suivante.

### 2.3.3 Cartographie du champ magnétique et de la température avec un centre NV unique

Afin d'estimer plus précisément l'amplitude du champ transverse, le protocole ici étudié est le suivant. Une cartographie du champ magnétique produit par la constriction est tout d'abord mesurée en appliquant des faibles courants générant des champs magnétiques faibles. On se place ainsi dans un régime où la levée de dégénérescence entre les raies de résonance dans le spectre de résonance magnétique est linéaire avec le champ magnétique. La carte du champ magnétique produit pour des courants bien plus importants est alors déduite numériquement, en exploitant la linéarité de la relation liant champ magnétique et courant. Ceci nous permet alors d'extraire la composante transverse du champ magnétique sous fort courant et d'en déduire le décalage de la fréquence centrale induite par ce champ. En comparant ce décalage à celui mesuré, on peut ensuite déduire la variation de température locale.

Afin de caractériser précisément le champ magnétique produit par la constriction, le capteur de température est modifié par une pointe en diamant hébergeant un centre NV unique optimisée pour

la mesure de champ magnétique. Cela va permettre de cartographier le champ magnétique  $B_{NV}$  généré par le courant  $\mathcal{I}_e$  dans la constriction, puis, en connaissant l'orientation du centre NV dans la pointe et sa distance de vol, de reconstruire la carte du champ magnétique total généré  $B_{total}$ . L'orientation du centre NV est caractérisée par les angles  $\theta_{NV}$  et  $\varphi_{NV}$  représentant les angles entre l'axe de quantification du centre NV et le référentiel du laboratoire  $(X, Y, Z)$  (voir Figure 2.27 (a)). On détermine ces deux angles  $\theta_{NV}$  et  $\varphi_{NV}$  par la procédure de calibration décrite dans l'Annexe D et cela permet de trouver pour ce centre NV unique dans la pointe en diamant  $\varphi_{NV} = 87,5 \pm 2^\circ$  et  $\theta_{NV} = 55 \pm 2^\circ$ .

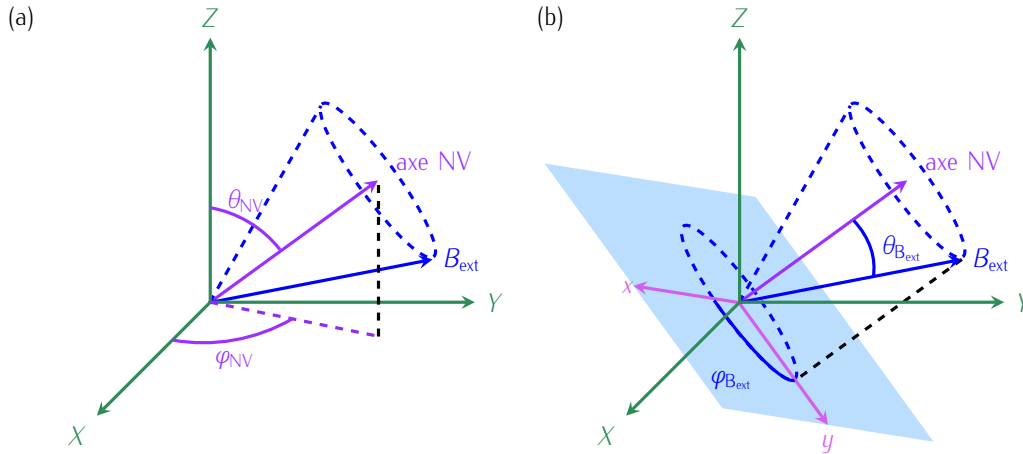


FIGURE 2.27 – (a) Schéma des angles  $\theta_{NV}$  et  $\varphi_{NV}$  du centre NV dans le référentiel du laboratoire  $(X, Y, Z)$ . (b) Définition des angles  $\theta_{B_{ext}}$  et  $\varphi_{B_{ext}}$ . L'angle  $\varphi_{B_{ext}}$  est l'angle de la projection du champ magnétique  $B_{ext}$  dans le plan perpendiculaire à l'axe du centre NV  $(x, y)$  tandis que  $\theta_{B_{ext}}$  est l'angle entre l'axe du centre NV et le champ magnétique externe  $B_{ext}$ .

La cartographie du champ magnétique est ensuite réalisée en appliquant un champ magnétique externe aligné suivant l'orientation du centre NV. En présence du champ magnétique externe et en absence de courant  $\mathcal{I}_e$ , la raie de résonance se dédouble sous l'action du champ magnétique appliqué. Dans nos expériences, on relève notamment que la position centrale  $\bar{f}_0 = 2870,4 \pm 0,1$  MHz est légèrement différente de la valeur de  $D = 2868,6 \pm 0,1$  MHz mesurée à champ nul et en absence de courant  $\mathcal{I}_e$ . Ceci signifie que le champ magnétique externe n'est pas parfaitement aligné à l'axe de quantification du centre NV. On peut déterminer les composantes parallèle  $B_{NV_{ext}}$  et perpendiculaire  $B_{\perp_{ext}}$  de ce champ suivant les formules suivantes [86, 134] :

$$B_{ext} = \frac{1}{3\gamma_{NV}}(f_+^2 + f_-^2 - f_+f_- - D^2 - 3\mathcal{E}^2)$$

$$\Delta = \frac{7D^3 + 2(f_+ + f_-)(2(f_+^2 + f_-^2) - 5f_+f_- - 9\mathcal{E}^2) - 3D(f_+^2 + f_-^2 - f_+f_- + 9\mathcal{E}^2)}{9(f_+^2 + f_-^2 - f_+f_- - D^2 - 3\mathcal{E}^2)} \quad (2.21)$$

avec  $\Delta \approx D \cos 2\theta_{\text{ext}}$ ,  $f_- = 2781,9 \pm 0,1$  MHz et  $f_+ = 2958,9 \pm 0,1$  MHz,  $\mathcal{E} = 1,9 \pm 0,1$  MHz le paramètre de clivage transverse, et  $\theta_{\text{ext}}$  désignant l'angle entre le champ magnétique externe et l'axe du centre NV (voir [Figure 2.27 \(b\)](#)).

Dans nos conditions expérimentales, on obtient :  $B_{\text{ext}} = 3,5$  mT et  $\theta_{B_{\text{ext}}} = 25,7^\circ$ . On peut noter que seul l'angle  $\theta_{B_{\text{ext}}}$  peut être extrait tandis que l'angle  $\varphi_{B_{\text{ext}}}$  du champ magnétique dans le plan perpendiculaire à l'axe du centre NV ne peut être déterminé suivant cette méthode.

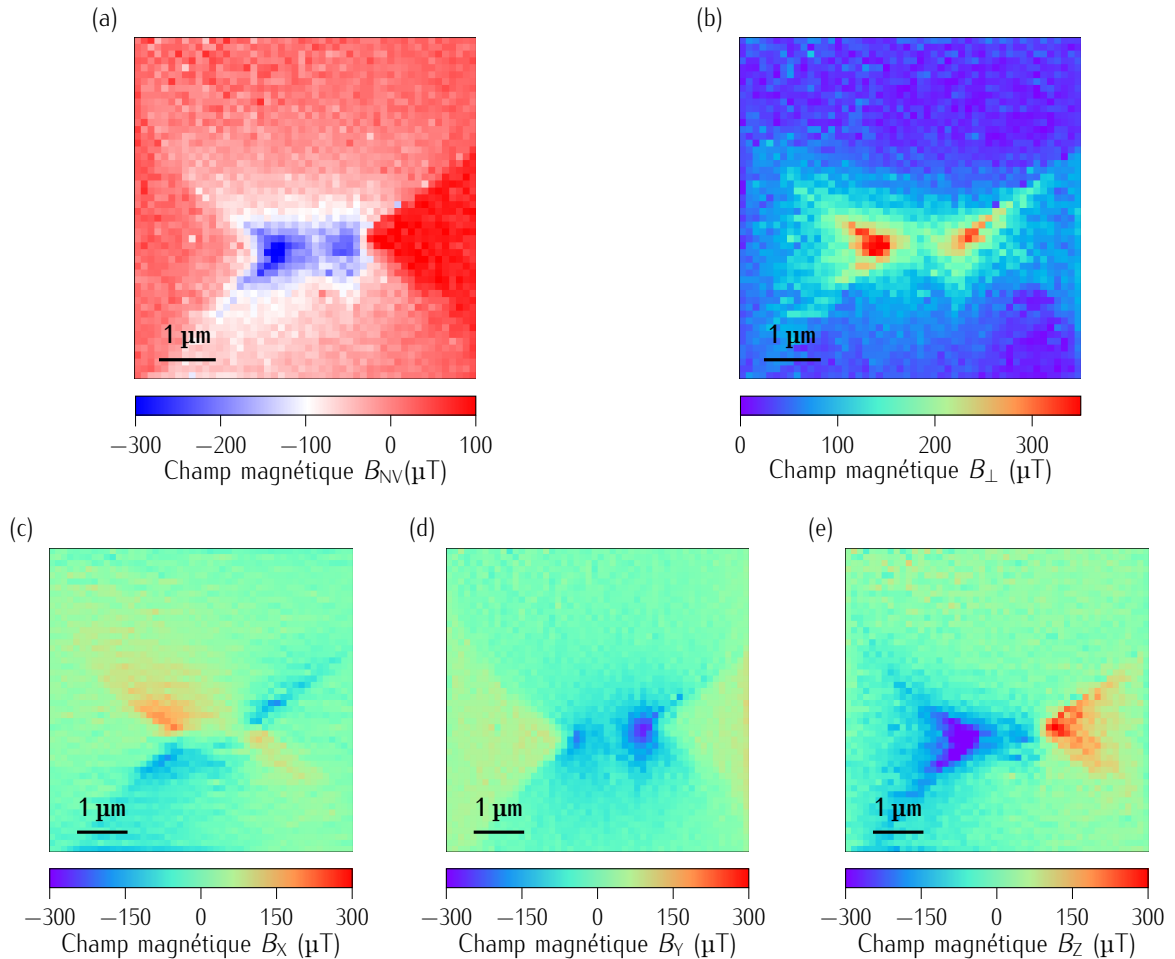


FIGURE 2.28 – (a) Carte expérimentale du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  pour un courant  $\mathcal{I}_e = 0,5$  mA. (b)-(e) Cartes, extraites à partir de la carte en (a), du champ magnétique  $B_{\perp}$  à l'axe du centre NV,  $B_X$ ,  $B_Y$  et  $B_Z$  (composantes du champ magnétique dans le référentiel du laboratoire  $X$ ,  $Y$ ,  $Z$ ) suivant la méthode décrite dans l'[Annexe C](#).

Connaissant l'orientation du centre NV et l'amplitude des composantes parallèle et transverse du champ externe, on peut alors réaliser une cartographie du champ magnétique produit par la constriction en enregistrant en chaque point le spectre de résonance magnétique en mode *FullB* (voir [Chapitre 1](#)). Dans nos expériences, le courant appliqué est de  $\mathcal{I}_e = 0,5$  mA. Ce faible courant va induire un champ magnétique perpendiculaire inférieur à  $500 \mu\text{T}$  soit bien en dessous du régime où ce dernier induit une anisotropie de l'effet Zeeman. Dès lors, la levée de dégénérescence dans le spectre de résonance magnétique sera directement proportionnelle au champ magnétique produit

par la ligne de courant. À partir de cette carte de champ magnétique  $B_{NV}$  (voir Figure 2.28 (a)), on peut reconstruire, par la méthode décrite dans l'Annexe C, les cartes des composantes du champ magnétique  $B_X$ ,  $B_Y$ ,  $B_Z$  dans le référentiel du laboratoire (voir Figure 2.28 (c)–(e)). Cela permet finalement de déterminer  $B_{\perp} = \sqrt{B_X^2 + B_Y^2 + B_Z^2 - B_{NV}^2}$  (voir Figure 2.28 (b)).

Cette mesure a été réalisée pour de faibles courants, régime dans lequel l'impact de la composante perpendiculaire reste négligeable. Dans nos mesures d'imagerie thermique, les courants nécessaires pour produire un effet de chauffage, sont bien plus importants, d'un à deux ordres de grandeur supérieurs. Pour extraire la composante  $B_{\perp}$  dans ce régime de fort champ, on exploite la linéarité de la relation entre le champ magnétique généré et le courant  $\mathcal{I}_e$ , en appliquant simplement un facteur multiplicatif sur la carte de champ magnétique enregistrée à faible courant. Ceci nous permet de déduire la valeur de  $B_{\perp}$  et de fait la variation de la position centrale  $\Delta\vec{f}$  induite par ce champ. Cette méthode a été appliquée pour extraire l'échauffement induit au niveau de la constriction lorsqu'un courant  $\mathcal{I}_e = 6$  mA est appliqué. En chaque pixel, le spectre de résonance magnétique est enregistré en mode dit *FullBT*. La figure 2.29 (c) montre une cartographie de la variation de la position centrale  $\Delta\vec{f}$  mesurée en chaque point. Afin d'extraire la variation locale de température, il convient de comparer cette carte expérimentale, incluant les contributions des effets de chauffage et champ magnétique transverse, à celle reproduisant la variation de la position centrale  $\Delta\vec{f}$  induite par la composante transverse du champ uniquement. Cette carte de référence est déduite de la carte du champ magnétique mesurée à faible courant après application du facteur multiplicatif. Ces deux cartes, carte expérimentale et carte de référence, sont présentées sur la figure 2.29 (c) et la figure 2.29 (d). On relève ici deux points. Tout d'abord, bien que l'on connaisse précisément la valeur du champ magnétique externe  $B_{\text{ext}}$  et son angle  $\theta_{B_{\text{ext}}}$  avec l'axe du centre NV, aucune information ne permet de remonter à la valeur de l'angle  $\varphi_{B_{\text{ext}}}$  dans le plan perpendiculaire à l'axe de quantification du centre NV (voir Figure 2.27 (b)). Cette donnée est cependant importante pour prédire la variation de la position centrale  $\Delta\vec{f}$ . Afin de générer cette carte de référence (voir Figure 2.29 (d)) et ainsi prédire la variation de la position centrale  $\Delta\vec{f}$ , l'angle  $\varphi_{B_{\text{ext}}}$  est déduit en générant des cartes pour des angles  $\varphi_{B_{\text{ext}}}$  allant de  $0^\circ$  à  $360^\circ$  et en comparant avec la carte expérimentale obtenue à fort courant. Il apparaît que la valeur la plus probable pour cet angle est de  $\varphi_{B_{\text{ext}}} = 315^\circ$ . D'autre part, on note que les cartes sur la figure 2.29 (c) et la figure 2.29 (d) présentent des distorsions différentes. Ceci est aussi observé sur les cartes de photoluminescence du centre NV mesurées à faible et fort courant (voir Figure 2.29 (a) et Figure 2.29 (b)). Ces cartes révèlent la géométrie de la constriction, du fait de la réflexion du signal de photoluminescence sur la couche en or. Ces distorsions proviennent de l'imperfection des scanners qui servent au déplacement de l'échantillon et de la différence du temps d'acquisition en chaque pixel. Pour comparer les deux cartes montrées sur la figure 2.29 (c) et la figure 2.29 (d), deux coupes indiquées par les traits rouge et bleu sont réalisées. Les résultats sont reportés dans la figure 2.29 (e). Au premier abord, on remarque que ces deux coupes sont assez

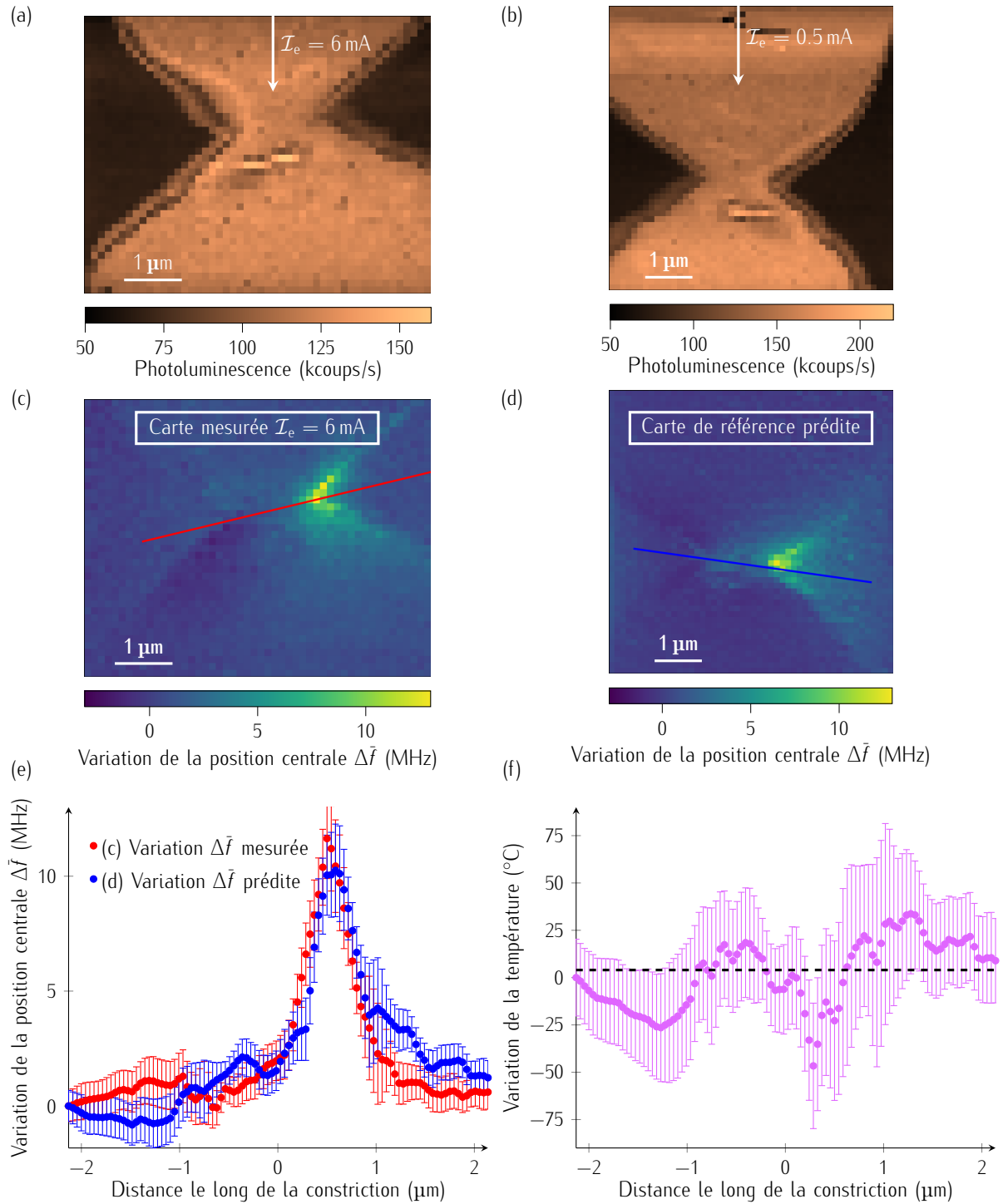


FIGURE 2.29 – (a)-(b) Cartes de la variation de la photoluminescence du centre NV mesurée en chaque pixel pour des courants  $\mathcal{I}_e = 6 \text{ mA}$  et  $\mathcal{I}_e = 0,5 \text{ mA}$  respectivement. (c) Carte de la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  mesurée expérimentalement sur le spectre de résonance magnétique en chaque pixel pour un courant  $\mathcal{I}_e = 6 \text{ mA}$ . (d) Carte, dite de référence, de la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  prédite à partir des cartes de champ magnétique à faible courant ( $\mathcal{I}_e = 0,5 \text{ mA}$ ) ne prenant en compte que l'impact de la composante  $B_{\perp}$  du champ magnétique, sans inclure l'effet de chauffage, pour un angle  $\varphi_{B_{\text{ext}}} = 315^{\circ}$ . (e) Évolution de la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  suivant les deux coupes bleue et rouge montrées sur les cartes (c) et (d) respectivement. (f) Évolution de la variation de la température  $\Delta T$  suivant les deux coupes rouge et bleue montrées sur les cartes (c) et (d) respectivement. La mesure est réalisée sur la constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 950 \text{ nm}$ .

similaires et que la variation de la position centrale  $\Delta\bar{f}$  est d'environ 12 MHz sur un côté de la constriction. En soustrayant ces deux coupes, il est alors possible d'extraire l'impact de l'échauffement sur la position centrale. Les résultats sont reportés dans la [figure 2.29](#) (f). Cette figure montre la variation de température extraite le long de la constriction. Bien que l'on relève des variations de température d'amplitude substantielle allant de  $-25$  K à  $25$  K, l'erreur sur la température est grande, du même ordre de grandeur. Or nos simulations prédisent une variation de température d'environ 2 K pour cette valeur de courant  $\mathcal{I}_e = 6$  mA, bien deçà de notre barre d'erreur. Cette variation est de fait masquée par les erreurs importantes lors de la mesure.

Finalement, cette procédure de mesure semble aussi montrer d'importantes limitations. Elle se heurte à nouveau à l'incertitude importante sur la valeur du champ  $B_{\perp}$ , due à un trop faible temps d'acquisition en chaque pixel dans nos expériences. Pour éviter les dérives des scanners et conserver des temps d'acquisitions raisonnables (de l'ordre de quelques heures pour chaque carte), le temps d'acquisition en chaque pixel est dans le cas présent d'environ 8 s. Or, il est nécessaire, en chaque pixel, de mesurer le spectre autour des deux raies de résonance, en mode *FullBT* et la grande plage de fréquence nécessaire pour conserver l'information des deux raies de résonance réduit considérablement la durée de l'acquisition par fréquence sur le spectre de résonance magnétique. Dans les mesures présentées, pour chaque pixel, le spectre de résonance magnétique est composé de 160 fréquences. Autrement dit, pour chaque fréquence sur le spectre de résonance magnétique, la durée de la mesure est d'environ 50 ms. Ceci se traduit par une plus grande erreur sur la détermination de position des deux raies de résonance et donc de la position centrale  $\bar{f}$ , et par la même une incertitude sur la mesure des variations de température allant jusqu'à  $\pm 25$  K. Or les simulations prédisent que pour avoir un effet de chauffage de  $\Delta T = 30$  K, il faut appliquer un courant de  $\mathcal{I}_e = 30$  mA, courant qui produit un champ magnétique d'environ 20 mT à une distance de 200 nm de la constriction, soit un champ cinq fois plus important comparé à nos expériences. Pour compenser cet augmentation du champ magnétique, il est nécessaire d'avoir une plage de fréquence plus importante autour des raies de résonance pour chaque pixel. Ceci impose, pour une durée d'acquisition par pixel équivalente, de diminuer la durée de la mesure pour chaque fréquence composant le spectre de résonance magnétique, au détriment de la précision de mesure de la température. On pourrait aussi accroître le temps d'acquisition par carte mais celui-ci est déjà de plusieurs heures.

### 2.3.4 Stratégies possibles pour s'affranchir de l'effet de la composante perpendiculaire du champ magnétique

Il apparaît que dissocier l'effet du champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$  et de la température ne semble pas concluant suivant les deux protocoles de mesure précédents. Deux autres stratégies restent

possibles. Une première consiste à imaginer un protocole de mesure qui permet de découpler l'effet du champ magnétique généré par la constriction de l'effet de la température. Pour cela, on pourrait appliquer un courant  $\mathcal{I}_e$  non pas continu dans la ligne de courant mais de manière impulsionnelle. En effet, juste après le passage de l'impulsion de courant, seul l'effet de chauffage devrait a priori être observable sur le spectre de résonance magnétique. Cependant, ceci suppose d'enregistrer le spectre de résonance magnétique sur un temps court, durant lequel la température reste constante, afin de s'affranchir d'un élargissement des raies. D'après nos simulations montrées sur la [figure 2.30](#), la dynamique de thermalisation de la ligne de courant est très rapide, sur des échelles de quelques dizaines de  $\mu\text{s}$ , ne permettant pas l'acquisition du spectre de résonance magnétique. Une autre stratégie consiste à réaliser la mesure sur une ligne de courant de dimension nanométrique générant des échauffements pour des courants faibles, inférieurs à  $\mathcal{I}_e = 1 \text{ mA}$ , et de fait, générant des champs magnétiques de faible amplitude (inférieure à quelques mT). Cette seconde stratégie est explorée dans la partie suivante.

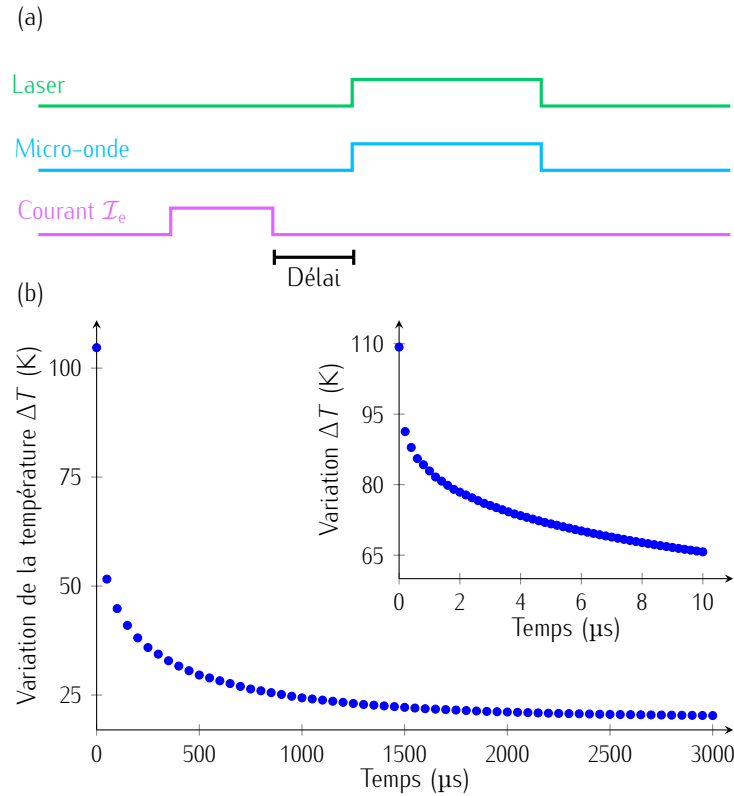


FIGURE 2.30 – (a) Protocole de mesure pour découpler les contributions du champ magnétique et de la température. Cette séquence est composée d'une impulsion de courant  $\mathcal{I}_e$  (ici fixé à 50 mA) pour générer un effet de chauffage puis d'une impulsion laser et micro-onde pour mesurer le spectre de résonance magnétique. (b) Simulation numérique de l'évolution de la variation de température en fonction du temps sur la constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 950 \text{ nm}$ . Un agrandissement est montré aux temps courts, sur une plage de temps allant de 0  $\mu\text{s}$  à 10  $\mu\text{s}$ .

## 2.4 Nanosources de chaleur formées par des lignes de courant de dimensions nanométriques

Dans cette partie, l'effet Joule est toujours le phénomène utilisé pour générer de la chaleur mais la géométrie et le matériau formant une ligne de courant ont été optimisés pour contrer les problèmes de champ magnétique généré trop important. Deux types de matériaux ont été étudiés : du métal et des semi-conducteurs.

### 2.4.1 Nanosources de chaleur formées par des lignes métalliques de dimension nanométrique

La nanosource de chaleur étudiée dans cette partie utilise aussi l'effet Joule, non plus dans des constriction mais dans des lignes de courant de dimensions nanométriques intégrées au sein d'une ligne de courant micrométrique. Ces lignes de courant nanométriques sont intéressantes pour différentes raisons. La première réside dans leur dimension car il est possible d'atteindre des largeurs de lignes  $\mathcal{L}_f$  pouvant atteindre 50 nm, permettant ainsi de tester les limites de la résolution spatiale de la pointe. De plus, ces lignes induisent des variations de température en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  bien plus importantes que dans les constriction pour une même valeur de courant (voir [Figure 2.31](#)). Enfin, la résistivité de la ligne et donc l'amplitude de l'échauffement peuvent être modifiées en changeant la longueur de la ligne et le matériau qui la constitue.

Les constriction précédemment étudiées étaient formées d'or. Cependant, l'or présente à la fois une grande conductivité électrique et thermique (voir [tableau 2.2](#)), ce qui est défavorable pour obtenir des échauffements importants sous faible courant. Une possibilité serait de recourir à des lignes de courant en titane, matériau présentant des conductivités électrique et thermique bien plus faibles que l'or. On remarque en effet que pour des lignes de largeur  $\mathcal{L}_f = 50$  nm et de longueur  $5 \mu\text{m}$  traversées par un courant  $\mathcal{I}_e = 0,5$  mA générant un champ magnétique inférieur à 1 mT, l'échauffement dans la ligne de titane est 30 fois plus élevé que dans la ligne en or (voir [Figure 2.31](#) (d)). Cependant, le titane est oxydable. Une possibilité est de protéger le fil en titane d'une épaisseur de 80 nm par une couche de platine non oxydable d'une épaisseur d'environ 20 nm et de conductivités thermique et électrique intermédiaires.



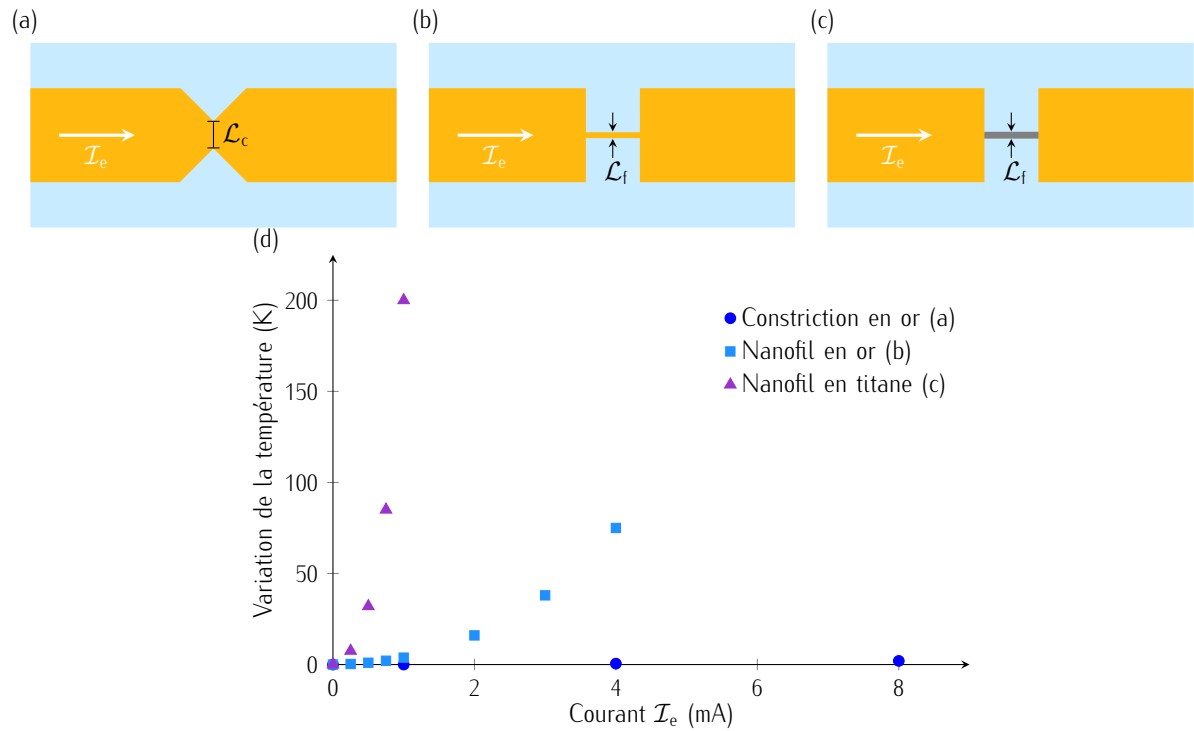


FIGURE 2.31 – (a) Schéma de la constriction de largeur  $\mathcal{L}_c = 750$  nm. (b)-(c) Schéma des lignes de courant nanométriques en or (de couleur jaune) et en titane (de couleur grise) respectivement. Les lignes de courant de dimensions nanométriques sont insérées au sein d'une ligne de courant en or de largeur micrométrique. Elles ont une largeur  $\mathcal{L}_f = 50$  nm et une longueur  $5 \mu\text{m}$ . L'épaisseur de la constriction et des lignes de courant est de  $100$  nm. (d) Simulation numérique de l'évolution de la variation de température en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  appliqué pour ces trois géométries.

Métal	Conductivité thermique ( $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ )	Conductivité électrique ( $\text{S m}^{-1}$ )	Oxydation
Or (Au)	318	$45,5 \times 10^6$	Non
Titane (Ti)	22	$2,4 \times 10^6$	Oui
Platine (Pt)	72	$9,7 \times 10^6$	Non

TABLE 2.2 – Comparaison des différentes propriétés physiques clés à température ambiante de trois métaux d'intérêt pour fabriquer une nanosource de chaleur.

Quatre échantillons comportant des lignes de courant nanométriques en titane-platine (deux de  $\mathcal{L}_f = 50$  nm et deux de  $\mathcal{L}_f = 100$  nm) ont été fabriqués par l'entreprise *QNAMI*. Cependant, ces lignes ont toutes été détruites après application d'un courant  $\mathcal{I}_e$  et d'une tension extrêmement faibles (de l'ordre de  $10$  nA à  $100$  nA). L'hypothèse la plus probable est que la couche de titane déposée

n'est pas cristalline mais plutôt formée d'agrégats fragilisant les lignes de courants. Ceci nous a conduit à considérer un autre classe de matériau : les semi-conducteurs.

### 2.4.2 Nanosources de chaleur formées par des lignes semi-conductrices de dimension nanométrique

L'intérêt de recourir à des semi-conducteurs est qu'ils possèdent à la fois une conductivité thermique et électrique faible. La conductivité électrique peut de plus être contrôlée en dopant le matériau de façon adéquate. Pour des semi-conducteurs *III-V* non-dopés épitaxiés par Epitaxie en Phase Vapeur aux Organo-Métalliques, tel que l'arséniure d'indium gallium ( $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ ) étudié ici, le dopage résiduel après croissance est de l'ordre de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ , ce qui se traduit par une conductivité électrique  $\sigma_e = \mu_n en = 1900 \text{ S m}^{-1}$  (à titre de comparaison, la conductivité électrique de l'or est de  $45,6 \times 10^6 \text{ S m}^{-1}$ ) avec  $\mu_n$  la mobilité des électrons dans le matériau,  $e$  la charge de l'électron et  $n$  le dopage électronique. Cette conductivité électrique laisse entrevoir a priori un effet Joule très important.

En collaboration avec le *Centre des Nanosciences et de Nanotechnologies à Palaiseau* (I. Sagnes et R. Braive), on a étudié cette approche. La géométrie de l'échantillon simulé et réalisé est la suivante. Les lignes de courant et micro-onde sont réalisées dans une couche de 200 nm d' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  non dopée reportée sur une couche de 2  $\mu\text{m}$  de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) sur un substrat de silicium (Si). La ligne de courant a une largeur de 3  $\mu\text{m}$ . Sa largeur est localement réduite à une valeur  $\mathcal{L}_f$  sur une longueur  $L_f$ . Quant à la ligne micro-onde, sa largeur est aussi de 3  $\mu\text{m}$  et elle est disposée à une distance de 3  $\mu\text{m}$  de la ligne de courant. Les lignes (de courant et micro-onde) sont ensuite recouvertes par une couche de 300 nm d'or excepté au niveau de la ligne de largeur  $\mathcal{L}_f$ . La couche d'or permet de conduire efficacement le courant jusqu'à la ligne de dimension  $\mathcal{L}_f$ . Au niveau de cette ligne de dimension réduite, on s'attend à observer une augmentation de la résistance et donc un effet de chauffage localisé. Afin de confirmer cet attendu, on a simulé la variation de température pour différentes longueurs  $L_f$  et largeurs  $\mathcal{L}_f$  (voir [Figure 2.32](#) (b)-(c)). On retrouve bien que la diminution de la largeur  $\mathcal{L}_f$  se traduit par un effet de chauffage plus important (voir [Figure 2.32](#) (b)). En revanche, la variation de température dépend relativement peu de la longueur  $L_f$  (voir [Figure 2.32](#) (c)). Le point le plus important ici est que la variation de température estimée pour une ligne de largeur  $\mathcal{L}_f = 50 \text{ nm}$ , atteint 42,5 – 50 K pour un courant très faible  $\mathcal{I}_e = 25 \mu\text{A}$  (voir [Figure 2.32](#) (c)). Le champ magnétique produit est par conséquent très faible, de l'ordre de 25  $\mu\text{T}$  à une distance de 200 nm de la ligne (voir [Figure 2.32](#) (d)). Dans ce régime de champ magnétique, la contribution de la composante perpendiculaire du champ magnétique devient complètement négligeable.

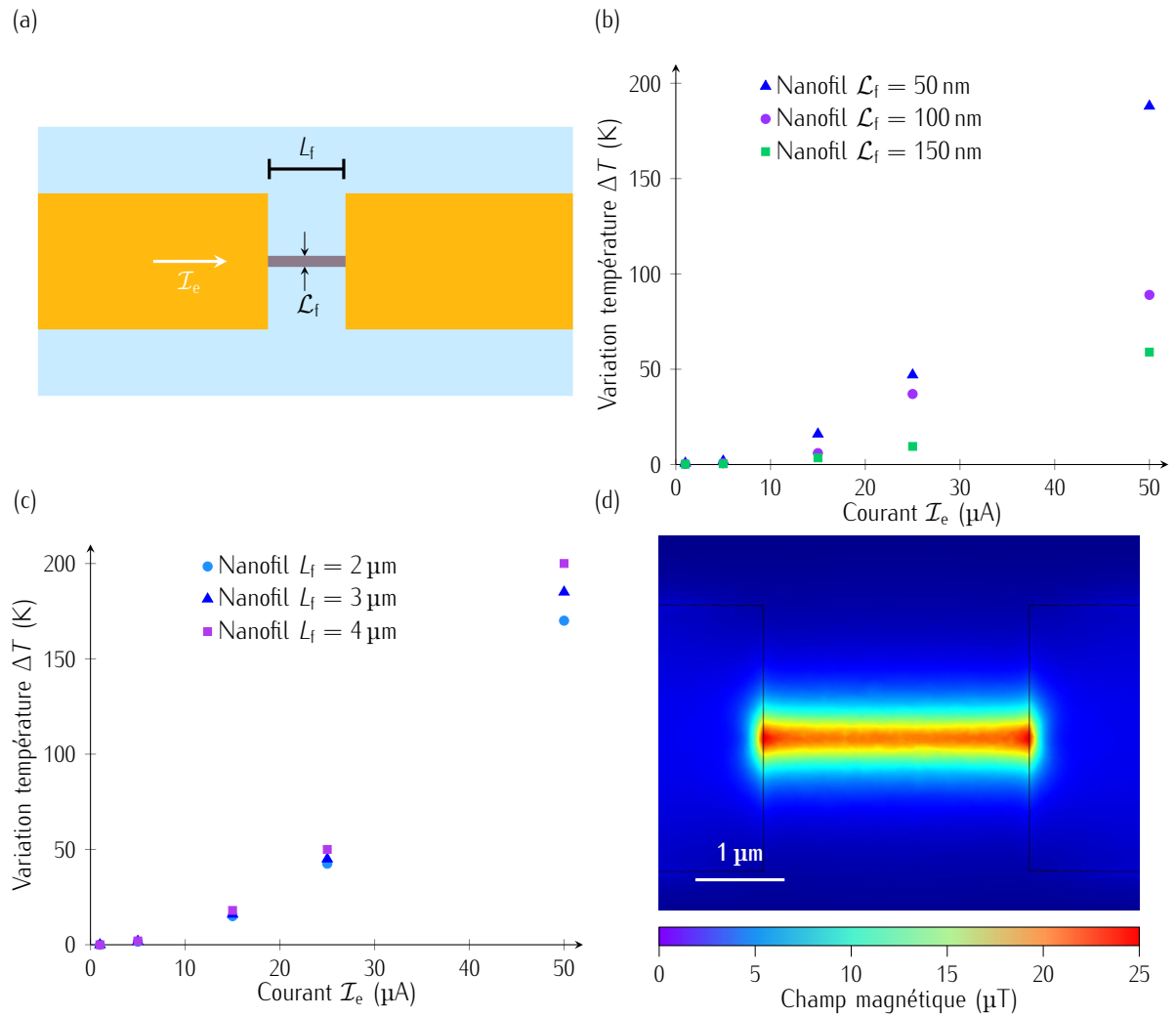


FIGURE 2.32 – (a) Schéma de la structure simulée formée d'une ligne micrométrique en  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ -Or intégrant une ligne en  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  de longueur  $L_f$  et largeur  $\mathcal{L}_f$ . (b) Évolution de la variation de température maximale au niveau de la ligne de courant nanométrique en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  pour une ligne semi-conductrice de longueur  $L_f = 3 \mu\text{m}$  et trois largeurs  $\mathcal{L}_f$  différentes. (c) Évolution de la variation de température maximale au niveau de la ligne de courant nanométrique en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  pour une ligne semi-conductrice de largeur  $\mathcal{L}_f = 50 \text{ nm}$  et trois longueurs  $L_f$  différentes. (d) Carte de champ magnétique simulé pour un courant  $\mathcal{I}_e = 25 \mu\text{A}$  et à une hauteur de 200 nm au-dessus de la ligne de courant de largeur  $\mathcal{L}_f = 50 \text{ nm}$  et de longueur  $L_f = 3 \mu\text{m}$ .

Des échantillons non dopés de différentes largeurs  $\mathcal{L}_f$  (50 nm, 75 nm, 100 nm et 150 nm) et longueurs  $L_f$  (2  $\mu\text{m}$ , 3  $\mu\text{m}$  et 4  $\mu\text{m}$ ) ont été fabriqués au *Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N)*. On peut voir l'exemple de l'un d'entre eux de largeur  $\mathcal{L}_f = 50 \text{ nm}$  et de longueur  $L_f = 4 \mu\text{m}$  sur la figure 2.33.

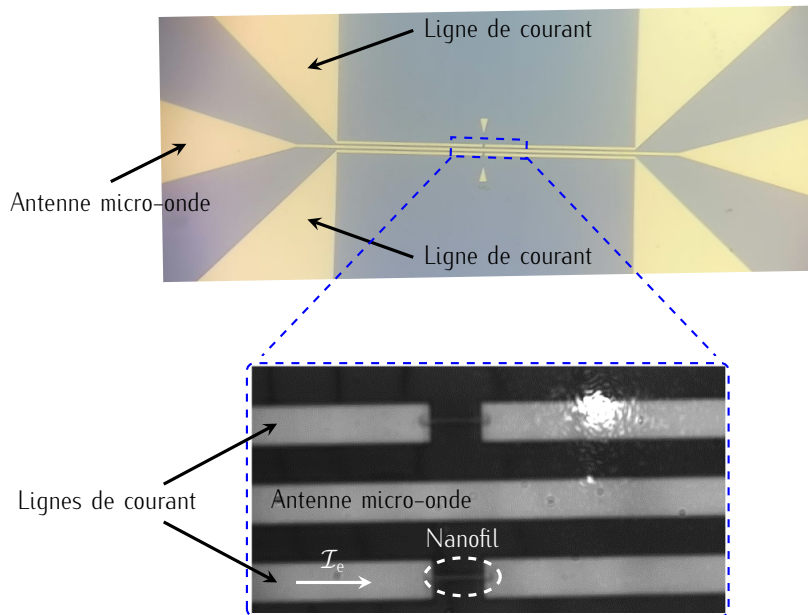


FIGURE 2.33 – Photographies de l'échantillon composé de nanofils semi-conducteurs. On y retrouve deux lignes de courant de part et d'autre de l'antenne micro-onde séparées de  $3\ \mu\text{m}$ . Les trois lignes sont d'épaisseur  $3\ \mu\text{m}$  et se trouvent sur une couche de  $2\ \mu\text{m}$  de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) qui possède une faible conductivité thermique, elle-même déposée sur un substrat de silicium ( $\text{Si}$ ). Les lignes (de courant et micro-onde) sont recouvertes par une couche de  $300\ \text{nm}$  d'or excepté au niveau de la ligne de largeur  $\mathcal{L}_f$ . Ces lignes forment alors des nanofils semi-conducteurs de part et d'autre de l'antenne micro-onde et sont visibles sur la photographie du bas (dans le cas présent, sa largeur  $\mathcal{L}_f$  est de  $150\ \text{nm}$  et sa longueur  $L_f$  est de  $4\ \mu\text{m}$ ).

La première étape consiste à mesurer le spectre de résonance magnétique lorsque la pointe en diamant est positionnée sur le nanofil semi-conducteur (voir Figure 2.34 (a)). Ce que l'on remarque en premier lieu, c'est que l'on n'observe pas d'effet de chauffage pour des courants allant jusqu'à  $5\ \mu\text{A}$  (voir Figure 2.34 (b)-(c)), ce qui est en adéquation avec les simulations de la variation de température en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  (voir Figure 2.32 (b)-(c)). Par ailleurs, la très grande résistivité du dispositif n'a pas permis d'appliquer des courants d'amplitude suffisante dans les lignes pour observer un effet de chauffage (au mieux  $5\ \mu\text{A}$ , tout en appliquant de très fortes tensions d'environ  $100\ \text{V}$ ). L'analyse expérimentale de la réponse électrique de la ligne indique non seulement la présence d'un élément résistif mais aussi d'un élément capacitif en série. En étudiant la variation de la tension en fonction du temps pour un courant de  $\mathcal{I}_e = 100\ \text{nA}$ , on peut extraire une résistance de  $R = 0,2\ \text{G}\Omega$  et une capacité électrique de  $0,68\ \mu\text{F}$  (voir Figure 2.34 (d)). Cette résistance obtenue expérimentalement est de trois ordres de grandeur supérieure à celle estimée numériquement. Cette résistance plus élevée peut provenir de la barrière Schottky élevée formée à l'interface entre le métal et le semi-conducteur non-dopé. Ceci se traduit par une zone de déplétion des charges importantes, qui rend le semi-conducteur quasiment isolant.

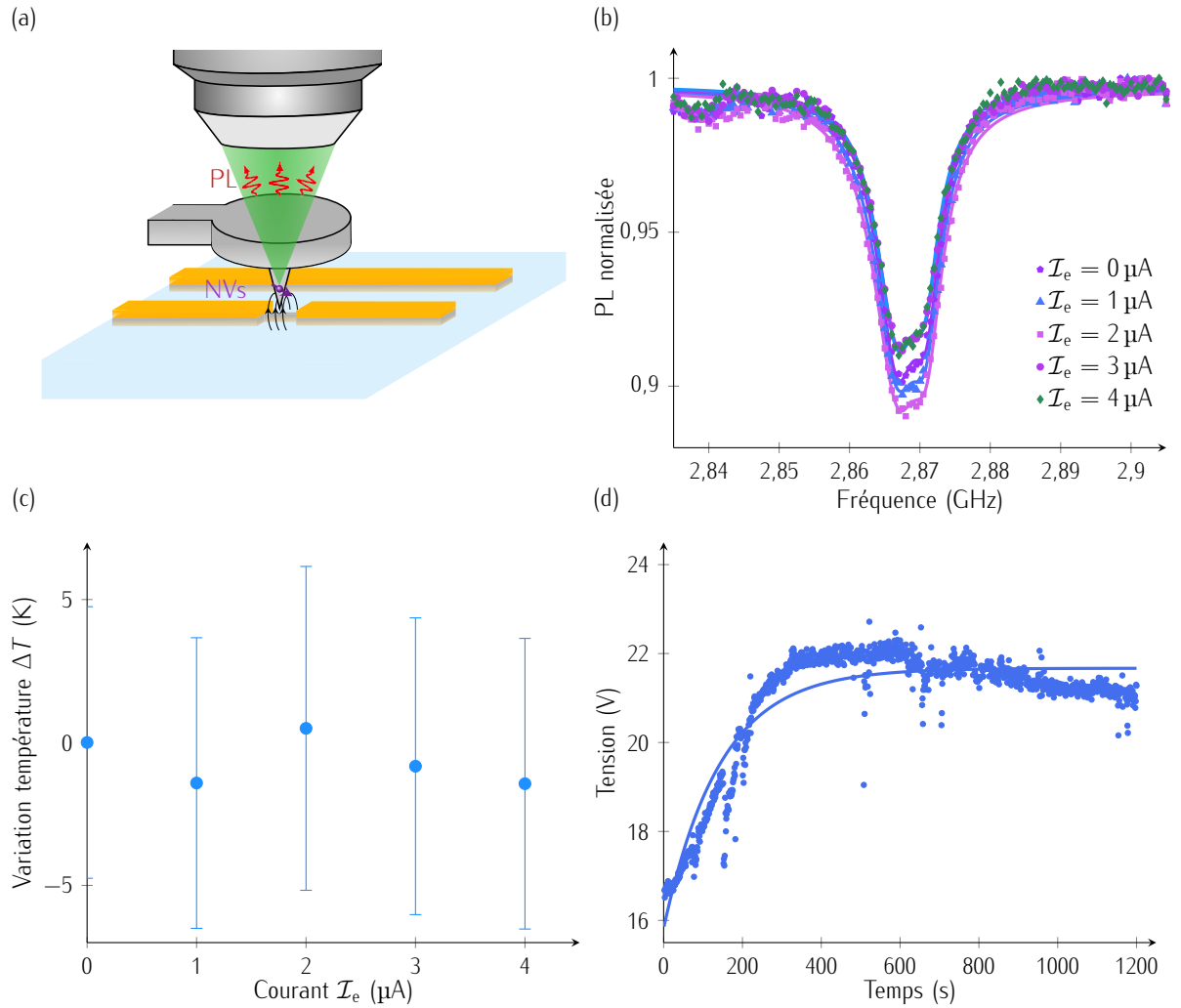


FIGURE 2.34 – (a) Schéma de l'expérience. Le capteur de température est engagé sur le nanofil semi-conducteur de largeur  $\mathcal{L}_f = 150 \text{ nm}$  et de longueur  $L_f = 4 \mu\text{m}$ . Aucun champ magnétique externe n'est appliqué pour séparer les raies de résonances car le champ magnétique généré par le nanofil est négligeable. (b) Spectres de résonance magnétique pour différents courants  $\mathcal{I}_e$ . (c) Évolution de la position centrale en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  dans le nanofil semi-conducteur. La position centrale est déterminée par l'ajustement par une fonction double lorentzienne des spectres de résonance magnétique (b). (d) Évolution de la tension en fonction du temps sur le nanofil semi-conducteur de largeur  $\mathcal{L}_f = 150 \text{ nm}$  et de longueur  $L_f = 4 \mu\text{m}$ . La fonction d'ajustement est :  $\mathcal{F} = U(1 - \exp(\frac{-t}{\tau})) + y_0$  avec  $U$  la tension,  $\tau = RC$ ,  $R$  la résistance et  $C$  la capacité.

Dans le cas présent, le courant ne passe pas dans le nanofil. Si on modélise l'échantillon, on se rend compte qu'il existe deux interfaces entre le semi-conducteur et le métal sur l'échantillon d'étude. On peut s'intéresser à l'une de ces deux interfaces, par exemple, l'interface métal-semi-conducteur ( $\text{Au}/\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  de dopage électronique résiduel  $N_d = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ). On peut commencer par définir le travail de sortie de l'or  $e\phi_m$  avec  $e$  la charge élémentaire et  $\phi_m = 4,8 \text{ eV}$  [227]) (voir Figure 2.35 (a)). En ce qui concerne le semi-conducteur, on définit de la même façon le travail de sortie du semi-conducteur  $e\phi_{sc}$  qui dépend du dopage électronique (voir Figure 2.35 (a)).

On caractérise alors le semi-conducteur par un autre paramètre qui est l'affinité électronique  $e\chi$  correspondant à l'énergie minimale pour promouvoir un électron du bas de la bande de conduction du matériau vers le niveau du vide (voir Figure 2.35 (a)). Pour l' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ ,  $\chi = 4,5 \text{ eV}$  [227]). Lorsque les deux matériaux sont en contact, il apparaît alors à l'interface métal/semi-conducteur, une barrière de potentiel  $V_d$  de hauteur donnée par [227] (voir Figure 2.35 (b)) :

$$eV_d = e\phi_m - e\phi_{sc} = e\phi_m - e\chi - k_b T \ln \left( \frac{N_i}{N_d} \right) \quad (2.22)$$

avec  $k_b$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température,  $N_i = 6,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  la concentration de porteurs intrinsèques pour l' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  et  $N_d$  la densité de donneurs. Le troisième terme correspond à la variation du niveau de Fermi  $E_f$  induit par le dopage électronique dans le semi-conducteur.

À partir de ces paramètres, on peut définir la largeur de la zone de déplétion  $\mathcal{W}$  dans le cas où la structure est polarisée par une tension  $U$ , comme [227] (voir Figure 2.35 (b)) :

$$\mathcal{W}(U) = \sqrt{\frac{2\epsilon_s}{eN_d} \frac{V_d}{e} + U} \quad (2.23)$$

avec  $\epsilon_s = 13,9\epsilon_0$  la permittivité de l' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  et  $\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$  la permittivité du vide.

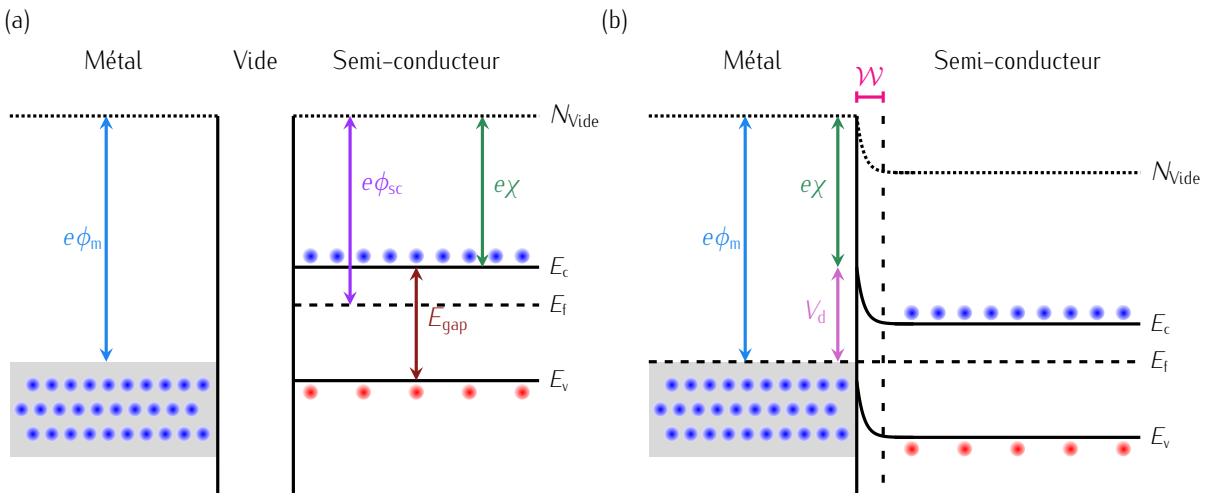


FIGURE 2.35 – Représentation schématique des diagrammes d'énergie pour un métal et un semi-conducteur de type  $n$  lorsque les deux matériaux ne sont pas en contact (a) et en contact (b). Définition des fonctions de travail du métal  $e\phi_m$  et du semi-conducteur  $e\phi_{sc}$  ainsi que de l'affinité électronique  $e\chi$ . Les énergies  $N_{vide}$ ,  $E_c$ ,  $E_f$ ,  $E_v$  et  $E_{gap}$  sont respectivement les énergies du vide, de la bande de conduction, du niveau de Fermi, de la bande de valence et de la bande interdite (*gap*) tandis que  $\mathcal{W}$  représente la zone de déplétion. Les charges négatives sont représentées en bleu et les charges positives en rouge.

Dans le cas d'une interface  $\text{Au}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  à tension  $U$  nulle, la largeur de la zone de déplétion  $\mathcal{W}(0)$  est d'environ 350 nm avec  $V_d > 0$ . Autrement dit, le travail de sortie du métal  $\phi_m$  est plus

grand que le travail de sortie du semi-conducteur  $\phi_{sc}$ . L'interface métal-semi-conducteur forme alors une barrière Schottky. À ce stade, il existe plusieurs possibilités pour faire passer du courant dans le semi-conducteur :

- Augmenter la tension de diffusion  $V_d$  pour réduire la zone de déplétion  $\mathcal{W}(0)$ .
- Se placer dans les conditions d'un contact ohmique entre le métal et le semi-conducteur soit  $V_d < 0$ .

La variation de la tension de diffusion peut être obtenue en jouant sur le dopage électronique  $N_d$ . En effet, lorsque le dopage électronique  $N_d$  augmente, la tension de diffusion augmente, ce qui a pour effet de réduire la zone de déplétion  $\mathcal{W}(0)$ . Cette conséquence induit une probabilité plus importante pour les électrons de passer la barrière de potentiel par effet tunnel au travers de leur comportement ondulatoire. Cependant, l'augmentation du dopage électronique du semi-conducteur a aussi pour seconde conséquence d'augmenter la conductivité électrique et, par conséquent, l'effet Joule est moins efficace pour un courant  $\mathcal{I}_e$  donné. En effet, on rappelle que la conductivité électrique du semi-conducteur s'exprime comme  $\sigma_e = \mu_n e N_d$  avec  $\mu_n$  la mobilité des électrons dans le matériau et  $e$  la charge de l'électron. Nous avons de fait simulé, pour différents dopages  $N_d$ , la variation de température mais aussi du champ magnétique généré par le nanofil semi-conducteur en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$ , afin de s'assurer que nous restons dans les conditions où le champ magnétique généré est inférieur à  $500 \mu\text{T}$ . Les résultats sont présentés sur la [figure 2.36](#) (a) pour des dopages électroniques  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Notons que le champ magnétique en fonction du courant  $\mathcal{I}_e$  ne dépend pas du dopage électronique. On retrouve la dépendance linéaire du champ magnétique généré en fonction du courant (voir [Figure 2.36](#) (b)). Le cas limite où le champ magnétique généré par le nanofil est de  $500 \mu\text{T}$  est atteint pour un courant  $\mathcal{I}_e$  de  $500 \mu\text{A}$ . De cette [figure 2.36](#), on remarque aussi que, comme attendu, pour un courant  $\mathcal{I}_e$  donné, la variation de température diminue drastiquement lorsque le dopage électronique augmente. En effet, pour un courant  $\mathcal{I}_e = 75 \mu\text{A}$ , la variation de température simulée est d'environ  $\Delta T = 4 \text{ K}$ ,  $\Delta T = 40 \text{ K}$  et  $\Delta T = 430 \text{ K}$  pour les nanofils respectivement de dopage électronique  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Pour un courant de  $500 \mu\text{A}$ , la variation de température simulée est d'au moins  $\Delta T = 180 \text{ K}$  ce qui est nettement suffisant pour déterminer la limite de la résolution spatiale du capteur de température. Ces simulations confirment que des nanofils en  $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  avec un dopage électronique de type n de  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  sont une solution viable pour générer une variation de température importante localisée au niveau du nanofil tout en restant dans la condition où le champ magnétique généré par le courant dans le nanofil est inférieur à  $500 \mu\text{T}$ .

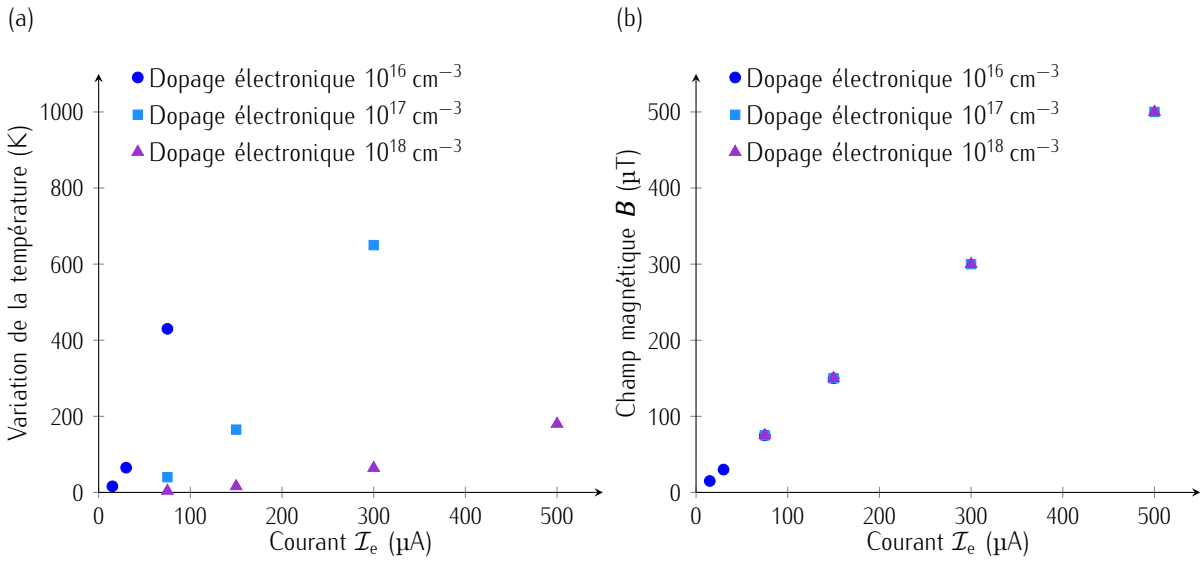


FIGURE 2.36 – Évolutions de la variation de température  $\Delta T$  (a) et du champ magnétique  $B$  (b) à une distance  $d_{NV}$  entre les centres NV et le nanofil de 200 nm en fonction du courant  $I_e$  pour des dopages électroniques de  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$  et  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  respectivement en bleu, bleu ciel et violet. Les simulations sont réalisées sur un nanofil d' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  de longueur  $L_f = 4 \mu\text{m}$  et de largeur  $\mathcal{L}_f = 50 \text{ nm}$  (voir Figure 2.32 (a)).

L'autre stratégie consiste à se placer dans un régime de contact ohmique entre les deux matériaux et non Schottky. Dans un dopage électronique, il est alors nécessaire que la tension  $V_d$  soit négative. Pour cela, il est possible de recourir à une modification de la nature du métal et/ou du semi-conducteur pour réduire le terme  $e\phi_m - e\chi$  de l'équation 2.22. En effet, on peut se pencher par exemple sur une interface  $\text{Ag}/\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  car l'argent a un travail de sortie de  $\phi_m = 4,3 \text{ eV}$  [227] contre  $\phi_m = 4,8 \text{ eV}$  [227] dans le cas de l'or. De ce fait, l'utilisation de l'argent a pour conséquence de réduire le terme  $V_d$  de l'équation 2.22. Par ailleurs, bien que l'argent s'oxyde à l'air, il est toujours envisageable d'ajouter une couche de platine sur l'argent qui n'intervient pas dans l'interface métal-semi-conducteur et permet d'éviter le problème d'oxydation lié à ce métal au contact de l'air. Il pourrait être envisageable de changer la nature du semi-conducteur et on peut penser à l'arséniure d'indium ( $\text{InAs}$ ) qui a une affinité électronique de  $\chi = 4,9 \text{ eV}$  contre une valeur de  $\chi = 4,5 \text{ eV}$  pour l' $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$  [227]. Cependant il reste difficile d'obtenir des couches d' $\text{InAs}$  de bonne qualité structurale et suffisamment épaisses par hétéroépitaxie du fait des contraintes accumulées lors de la croissance.

## Conclusion

Dans ce chapitre, on a introduit l'architecture d'un nouveau type de pointe en diamant optimisée pour la mesure de la température. Ces pointes en diamant de forme conique sont constituées d'un



petit volume de diamant et elles hébergent un ensemble de centres NV implanté à une distance du bout de la pointe d'environ  $d_{\text{NV}} \approx 200$  nm. La résolution spatiale attendue est limitée par le diamètre du bout de la pointe qui atteint environ 30 nm et la sensibilité prédite est de l'ordre de  $0,1 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ . L'objectif de ce chapitre était de valider les performances attendues de ces pointes, tout d'abord en termes de sensibilité puis de résolution spatiale.

La première partie du chapitre était consacrée à la sensibilité thermique du capteur de température. Cette grandeur a été déterminée sous des excitations laser et micro-onde continues. Les pointes ayant été fabriquées dans du diamant orienté (100), les centres NV présentent quatre orientations possibles équiprobables. Afin de permettre une mesure simultanée du champ magnétique et de la température, un champ magnétique externe a été appliqué afin de ne sélectionner qu'une seule de ces quatre familles, induisant une dégradation attendue d'un facteur 4 de la sensibilité environ. Dans nos mesures, la sensibilité atteint ainsi  $\eta_{\text{T}_{cw}} \approx 2 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ . La meilleure sensibilité obtenue est de  $0,7 \text{ K}/\sqrt{\text{Hz}}$ , proche des attendus théoriques (en champ magnétique nul). Cette sensibilité pourrait encore être améliorée, d'un facteur 2 environ en recourant à des excitations impulsionnelles et non continues, et d'un facteur 10 environ en utilisant des centres NV présentant une orientation préférentielle (par exemple dans du diamant orienté (113) [222–225]). De plus, on a aussi ici caractérisé les différents temps caractéristiques des centres NV : le temps de relaxation spin-réseau  $T_1$  ainsi que les temps de cohérences  $T_2^*$  et  $T_2$ . Le temps de relaxation mesuré  $T_1 \approx 3$  ms est du même ordre de grandeur que celui obtenu dans un diamant massif. Les temps de cohérences mesurés  $T_2^* \approx 1 \mu\text{s}$  et  $T_2 \approx 60 \mu\text{s}$  confirment que même si la pointe en diamant a un faible volume, les temps de cohérences ne sont significativement pas affectés, contrairement à ce qui est usuellement observé dans les nanodiamants [220].

Dans une seconde partie, on a tenté de qualifier la résolution spatiale du capteur en recourant à trois types de sources de chaleur modèles : des structures thermoplasmoniques, des constriction dans des lignes de courant et des nanofils dans des lignes de courant. Ces expériences se sont heurtées à plusieurs difficultés : l'échauffement incontrôlé de la pointe par le laser infrarouge d'excitation des structures thermoplasmoniques, la génération d'un champ magnétique trop important dans le cas des constriction dans des lignes de courant ainsi que la fragilité des nanofils métalliques. Une stratégie toujours à l'étude repose sur l'utilisation de nanofils dans des semi-conducteurs dopés. Cette géométrie offre deux avantages. D'une part, le courant nécessaire pour générer un échauffement est faible, permettant de nous placer dans le régime de champ magnétique faible. D'autre part, les nanofils ont une largeur pouvant atteindre 50 nm, ce qui est primordial pour déterminer la limite de la résolution spatiale du capteur de température. Ces échantillons sont en cours de fabrication au *Centre des Nanosciences et de Nanotechnologies à Palaiseau (C2N)*.

# LE CENTRE NV : DÉTECTEUR DE BRUIT MAGNÉTIQUE

---

<b>3.1 Dynamique de relaxation du centre NV</b>	<b>101</b>
3.1.1 Effet du bruit magnétique sur le temps de relaxation $T_1$	102
3.1.2 Effet du bruit magnétique sur la photophysique du centre NV	106
<b>3.2 Une source de bruit magnétique calibrée pour étudier la photophysique du centre NV</b>	<b>109</b>
3.2.1 Configuration expérimentale	109
3.2.2 Procédure expérimentale de mesure du temps de relaxation $T_1$	111
3.2.3 Calibration du temps de relaxation $T_1$ avec la source de bruit magnétique	112
<b>3.3 Validation expérimentale du modèle à trois niveaux</b>	<b>118</b>
3.3.1 Évolution des propriétés photophysiques du centre NV	118
3.3.2 Estimation de la sensibilité de cette technique	120
3.3.3 Comparaison avec la mesure à un $\tau$ unique	121
<b>3.4 Application de cette méthode sur une couche antiferromagnétique synthétique</b>	<b>124</b>
3.4.1 Détection des parois de domaine	124
3.4.2 Étude quantitative des parois de domaine	125
3.4.3 Étude de la variation du contraste des parois de domaine	126
3.4.4 Origine du bruit magnétique dans le matériau antiferromagnétique synthétique	128
<b>Conclusion</b>	<b>129</b>

Dans le [Chapitre 1](#), on a vu que le centre NV était un excellent capteur de champ magnétique. En le couplant à un microscope à balayage, on peut réaliser des cartes de champ magnétique avec une sensibilité pouvant aller du  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  pour un centre unique qui peut être accrue au  $\text{pT}/\sqrt{\text{Hz}}$  par des ensembles [\[228\]](#) avec une résolution spatiale de quelques dizaines de nm [\[33\]](#). De plus, cet outil fonctionnant à température ambiante est non-perturbatif et permet une mesure quantitative rendant possible la comparaison entre la théorie et les expériences. Pour mesurer un champ magnétique, on sonde l'évolution de l'écart entre les niveaux d'énergie  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  du spin électronique résultant de l'effet Zeeman. Or, les transitions entre les niveaux d'énergie  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  sont des processus dynamiques, caractérisés par deux temps de relaxation que l'on appelle  $T_1$  et  $T_2$ . Le temps de relaxation longitudinal  $T_1$  est le temps caractéristique que met le système à revenir dans un état d'équilibre thermodynamique à partir d'un état hors équilibre. Le temps de relaxation spin-spin dit  $T_2$  est, quant à lui, le temps caractéristique que met le système à perdre sa cohérence à partir d'une superposition quantique d'états. C'est à partir de l'étude de ces deux relaxations que l'on peut accéder à des grandeurs fluctuantes, ce qui est l'objet de ce chapitre. Le temps de relaxation  $T_1$  est sensible au bruit magnétique dans une gamme de fréquence GHz [\[229\]](#) tandis que le temps  $T_2$  renseigne sur des fluctuations de champ magnétique dans la gamme du MHz [\[230\]](#).

L'utilisation du centre NV en tant que capteur de bruit magnétique a pour finalité l'étude de matériaux magnétiques émergents émettant peu voir pas de champ de fuite, tels que les matériaux antiferromagnétiques ou bien ferrimagnétiques proches de leur température de compensation. Cette étude peut s'appuyer sur la mesure des fluctuations de champ magnétique produites par des ondes de spin. En effet, l'un des défis technologiques actuels est de pouvoir développer des dispositifs électroniques combinant une densité importante de stockage de données non volatile, une lecture et une écriture très rapides tout en consommant le minimum d'énergie possible. Pour répondre à ces critères, les matériaux antiferromagnétiques font l'objet de beaucoup d'études ces dernières années comme éléments actifs en spintronique, domaine qui combine la charge électrique des électrons avec son spin, une propriété purement quantique [\[231-233\]](#). Dans les matériaux antiferromagnétiques, l'interaction d'échange entre les moments magnétiques voisins induit un couplage antiparallèle, ce qui aboutit à une aimantation totale nulle [\[234, 235\]](#). Les avantages potentiels de ces matériaux sont multiples. Tout d'abord, les textures antiferromagnétiques sont très peu sensibles aux perturbations venant de champs magnétiques parasites, rendant possible un stockage non volatile [\[236, 237\]](#). Par ailleurs, il n'y a aucune interaction magnétique entre les domaines magnétiques voisins puisque ces textures magnétiques ne produisent aucun champ magnétique de fuite. Il s'agit d'un point important dans la miniaturisation des composants. De plus, dans ces matériaux antiferromagnétiques, la dynamique d'inversement de spin est très rapide (dans la gamme du THz [\[238, 239\]](#)) en comparaison avec les matériaux ferromagnétiques (dans la gamme du GHz [\[240\]](#)). Enfin, dans certains de ces matériaux, des textures chirales de spin sont présentes et peuvent être déplacées à des vitesses plus

importantes (environ  $750 \text{ ms}^{-1}$ ) avec une densité de courant identique (environ  $10 \times 10^{12} \text{ A m}^{-2}$ ) que dans leurs équivalents ferromagnétiques [241–244].

Cependant, les recherches sur les matériaux antiferromagnétiques se heurtent à la difficulté d’imager les textures magnétiques qu’ils hébergent. En effet, le champ de fuite provenant de ces matériaux est très faible. On peut citer quelques techniques comme l’utilisation du synchrotron en couplant la microscopie de photoémission d’électrons avec le dichroïsme linéaire magnétique de rayons X [245] ou encore le microscope à effet tunnel polarisé en spin [246, 247] qui permettent de visualiser des textures antiferromagnétiques à l’échelle nanométrique. La magnétométrie NV est également capable d’imager certaines textures antiferromagnétiques [51–57] lorsqu’elles produisent un champ de fuite supérieur à quelques dizaines de  $\mu\text{T}$ . En revanche, ce n’est pas toujours le cas et dans certaines textures l’aimantation est parfaitement compensée résultant en un champ de fuite nul. Afin de pouvoir étudier ce type de matériaux, B. Flebus et al. ont proposé en 2018 de ne pas sonder le champ magnétique statique mais plutôt le bruit magnétique produit par les ondes de spin activées thermiquement confinées dans les parois de domaine [248]. En sondant les variations spatiales de ce bruit, il est prédit que l’on peut localiser les parois. C’est dans ce but que l’on va s’intéresser à l’utilisation du centre NV comme capteur de bruit magnétique à l’échelle nanométrique.

Dans ce chapitre, je présenterai un modèle simplifié du centre NV pour comprendre comment évoluent les propriétés photophysiques du centre NV en présence d’un bruit magnétique. Dans un second temps, je réaliserai une étude quantitative de la réponse du centre NV en fonction du bruit magnétique que je confronterai au modèle simplifié. Cette démarche a pour but d’élaborer une méthode de détection optique de la présence de sources de bruit magnétique. Par la suite, j’estimerai la sensibilité de cette méthode optique puis la comparerai à une méthode communément utilisée dans la littérature qui s’appuie sur la mesure du temps de relaxation  $T_1$ . Enfin, une cartographie du bruit magnétique produit par un matériau antiferromagnétique synthétique (SAF) est démontrée grâce à cette méthode. Les résultats décrits dans la [Partie 3.2](#) et la [Partie 3.3](#) ont été publiés dans M. Rollo et al., *Physical Review B* 103, 235418 (2021) [31].

## 3.1 Dynamique de relaxation du centre NV

Dans cette partie, je vais tout d’abord présenter l’effet d’un bruit magnétique sur le temps de relaxation  $T_1$ . Pour cela, il est nécessaire de relier le temps de relaxation  $T_1$ , le taux de relaxation  $\Gamma_1$  et la composante transverse de la densité spectrale de bruit  $S_{B_\perp}$ . Dans un second temps, je vais mettre en place un modèle simplifié du centre NV composé de trois niveaux d’énergie et prédire l’évolution de la photoluminescence émise en fonction de  $T_1$ .

### 3.1.1 Effet du bruit magnétique sur le temps de relaxation $T_1$

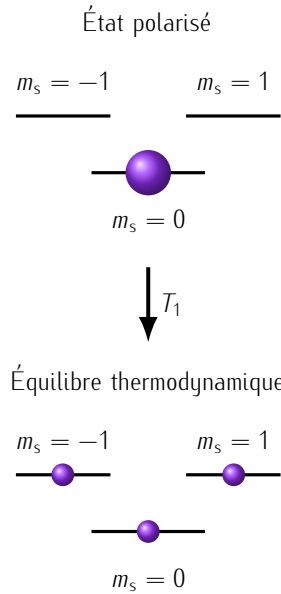


FIGURE 3.1 – Définition du temps de relaxation  $T_1$ .

Afin d'étudier des phénomènes physiques fluctuants avec le centre NV, on s'appuie sur la mesure du temps de relaxation du spin dans l'état fondamental du défaut. Cette technique a déjà été mise en œuvre et est appelée "relaxométrie" [2]. Le temps de relaxation  $T_1$ , aussi appelé temps de relaxation longitudinal ou durée de vie du spin, correspond au temps nécessaire afin que le spin placé hors équilibre, retourne à l'équilibre thermodynamique. Autrement dit, lorsque l'on polarise le centre NV dans un état de spin particulier, le temps de relaxation  $T_1$  correspond au temps que met le système à retourner dans une distribution de Boltzmann des populations entre les trois niveaux d'énergie  $m_s = 0$ ,  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$  (voir Figure 3.1). Dans le cas du centre NV, les trois états sont alors également peuplés car l'énergie thermique  $k_b T$  ( $4,1 \times 10^{-21}$  J à température ambiante) est supérieure à l'énergie  $hD$  ( $1,9 \times 10^{-24}$  J à température ambiante) de transition entre les niveaux d'énergie  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ . Cette relaxation est intrinsèquement liée aux interactions

avec les modes de phonons du réseau mais peut être accélérée en présence d'un bruit magnétique ayant une composante fréquentielle au voisinage de la résonance du centre NV, autrement dit avec une énergie suffisante pour induire des transitions entre les niveaux d'énergie. Ce temps de relaxation peut s'écrire comme suit :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^0} + \frac{1}{T_1^{\text{bruit}}} \quad (3.1)$$

avec  $T_1^0$  le temps de relaxation intrinsèque dû aux interactions avec les phonons du réseau (cette valeur est souvent de l'ordre de quelques ms à température ambiante et peut atteindre 100 s à 4 K [92]) et  $T_1^{\text{bruit}}$  la perturbation venant du bruit magnétique à proximité du centre NV.

Afin de comprendre l'effet du bruit magnétique sur la dynamique du centre NV, on peut commencer par établir le lien entre le temps de relaxation  $T_1$  et le taux de transition bidirectionnel entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$ , autrement appelé le taux de relaxation  $\Gamma_1$ . Pour cela, le centre NV est modélisé par un système fermé à trois niveaux correspondant aux niveaux d'énergie de l'état fondamental  $m_s = 0$ ,  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$ . Dans ce modèle, on néglige les contributions de l'état excité et de l'état métastable. La condition de système fermé permet s'écrit :

$$1 = n_0(t) + n_{-1}(t) + n_1(t) \quad (3.2)$$

avec  $n_0$ ,  $n_{-1}$  et  $n_1$  les populations correspondant aux états  $m_s = 0$ ,  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$  respectivement. L'évolution des populations peut s'exprimer par les équations suivantes :

$$\begin{cases} \frac{dn_0(t)}{dt} = k_{10}n_1(t) + k_{-10}n_{-1}(t) - k_{01}n_0(t) - k_{0-1}n_0(t) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = k_{01}n_0(t) - k_{10}n_1(t) \\ \frac{dn_{-1}(t)}{dt} = k_{0-1}n_0(t) - k_{-10}n_{-1}(t) \end{cases} \quad (3.3)$$

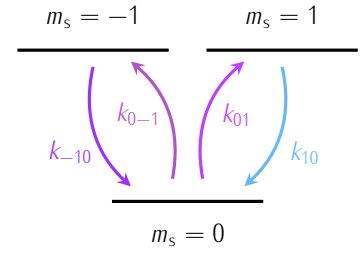


FIGURE 3.2 – Schéma des taux de transitions unidirectionnels entre les trois niveaux d'énergie de l'état fondamental.

avec  $k_{ij}$  les taux de transition unidirectionnels entre les états  $m_s = i$  et les états  $m_s = j$  (voir Figure 3.2). Ici, on va supposer qu'il n'y a aucune transition entre les états  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$  et que les taux de transition entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  sont équivalents. Cela revient à dire que le taux de relaxation vérifie  $\Gamma_1 = k_{10} = k_{01} = k_{-10} = k_{0-1}$ . Ceci permet de simplifier les équations précédentes :

$$\begin{cases} \frac{dn_0(t)}{dt} = \Gamma_1 (n_1(t) + n_{-1}(t) - 2n_0(t)) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \Gamma_1 (n_0(t) - n_1(t)) \\ \frac{dn_{-1}(t)}{dt} = \Gamma_1 (n_0(t) - n_{-1}(t)) \end{cases} \quad (3.4)$$

En utilisant l'équation 3.2, on peut donc réécrire :

$$\frac{dn_0(t)}{dt} = \Gamma_1 (1 - n_0(t) - 2n_0(t)) = \Gamma_1 (1 - 3n_0(t)) \quad (3.5)$$

On peut alors extraire l'évolution temporelle de la population  $n_0(t)$  :

$$n_0(t) = \frac{2}{3}e^{-3\Gamma_1 t} + \frac{1}{3} \quad (3.6)$$

De plus, d'après la distribution de Boltzmann,  $n_0(t) \propto e^{-\frac{t}{T_1}}$ , ce qui permet finalement de déterminer la relation entre le temps de relaxation  $T_1$  et le taux de relaxation  $\Gamma_1$  :

$$\Gamma_1 = \frac{1}{3T_1} \quad (3.7)$$

Maintenant que la relation entre ces deux grandeurs est établie, on peut se pencher sur l'effet du bruit magnétique sur ce taux de relaxation. Pour cela, on utilise le Hamiltonien suivant pour décrire l'effet du champ magnétique sur le centre NV :

$$\frac{\mathcal{H}_{ZE}}{h} = \gamma_{NV} \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}} \quad (3.8)$$

avec  $\gamma_{NV} = \frac{g_{NV}\mu_B}{h} = 28 \text{ GHz T}^{-1}$  le rapport gyromagnétique du centre NV,  $g_{NV}$  le facteur de Landé du centre NV,  $\mu_B$  le magnéton de Bohr,  $\mathbf{B}$  le champ magnétique fluctuant et  $\hat{\mathbf{S}} = (S_x, S_y, S_z)$  avec  $S_x$ ,  $S_y$  et  $S_z$  les opérateurs de spin  $S = 1$  (sans dimension).

La relaxation du spin est accélérée par la densité spectrale de bruit à la fréquence de résonance du centre NV, autrement dit sa variance à cette fréquence donnée. On peut écrire cette densité spectrale  $S_{B_j}$  avec  $j \in \{x, y, z\}$  :

$$S_{B_j} = \int_{-\infty}^{+\infty} B_j(t)B_j(t + \tau)e^{-i\omega\tau}d\tau \quad (3.9)$$

À partir de la théorie des perturbations du premier ordre [2], on peut écrire le taux de relaxation  $\Gamma_1^{\text{bruit}}$  :

$$\Gamma_1^{\text{bruit}} = 2 \sum_{j=x,y,z} \gamma_{\text{NV}}^2 S_{B_j}(f_{\text{NV}}) |\langle 1|\hat{\sigma}_j|0\rangle|^2 \quad (3.10)$$

Avec  $S_{B_j}$  correspondant aux composantes de la densité spectrale de  $B_j$  avec  $j \in \{x, y, z\}$ ,  $f_{\text{NV}}$  la fréquence de résonance du centre NV et  $\hat{\sigma}_j$  les matrices de Pauli.

Dans le cas présent, pour un spin 1, les termes  $|\langle 1|\hat{\sigma}_x|0\rangle|^2$  et  $|\langle 1|\hat{\sigma}_y|0\rangle|^2$  valent  $\frac{1}{2}$  et le terme  $|\langle 1|\hat{\sigma}_z|0\rangle|^2$  est nul. On obtient :

$$\Gamma_1^{\text{bruit}} = \gamma_{\text{NV}}^2 \left( S_{B_x}(f_{\text{NV}}) + S_{B_y}(f_{\text{NV}}) \right) = \gamma_{\text{NV}}^2 S_{B_{\perp}}(f_{\text{NV}}) \quad (3.11)$$

en définissant  $S_{B_{\perp}}(f_{\text{NV}}) = S_{B_x}(f_{\text{NV}}) + S_{B_y}(f_{\text{NV}})$ . En utilisant l'équation 3.7 et l'équation 3.11 puis en remplaçant dans l'équation 3.1, on peut relier le temps de relaxation à la densité spectrale de bruit :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^0} + 3\gamma_{\text{NV}}^2 S_{B_{\perp}}(f_{\text{NV}}) \quad (3.12)$$

Seule la composante transverse de la densité spectrale de bruit à la fréquence de résonance induit une accélération du temps de relaxation. Par la mesure du temps de relaxation  $T_1$ , il est donc possible de sonder un bruit magnétique transverse dans la gamme GHz qui correspond à la fréquence de résonance du centre NV.

La relaxométrie NV a déjà été utilisée pour différentes applications. On peut citer la détection du bruit de Johnson dans des conducteurs qui est la manifestation de l'agitation thermique des électrons [249, 250]. Cette agitation produit des fluctuations de champ magnétique et électrique. Cette technique a ainsi permis de caractériser le transport électronique dans une couche d'argent afin de comprendre son évolution en fonction de la température [249] comme illustré dans la figure 3.3 (a)-(b). La relaxométrie a aussi été employée pour l'étude de molécules paramagnétiques [214, 221, 230, 251-254] et a permis de mesurer le bruit magnétique produit par une nanoparticule de magnétite [230] comme montré sur la figure 3.3 (c)-(d). Ces nanoparticules ont des applications en biologie pour l'étude de cellules vivantes contenant un marqueur non toxique ainsi que dans le domaine médical. Enfin, ce procédé de mesure a aussi été appliqué à l'observation des instabilités électroniques dans le graphène [255] comme présenté dans la figure 3.3 (e)-(f), à la mesure du pH et du potentiel d'oxydoréduction dans des canaux microfluidiques [256-258] ou encore à l'étude des ondes de spin dans des matériaux magnétiques [259-261].

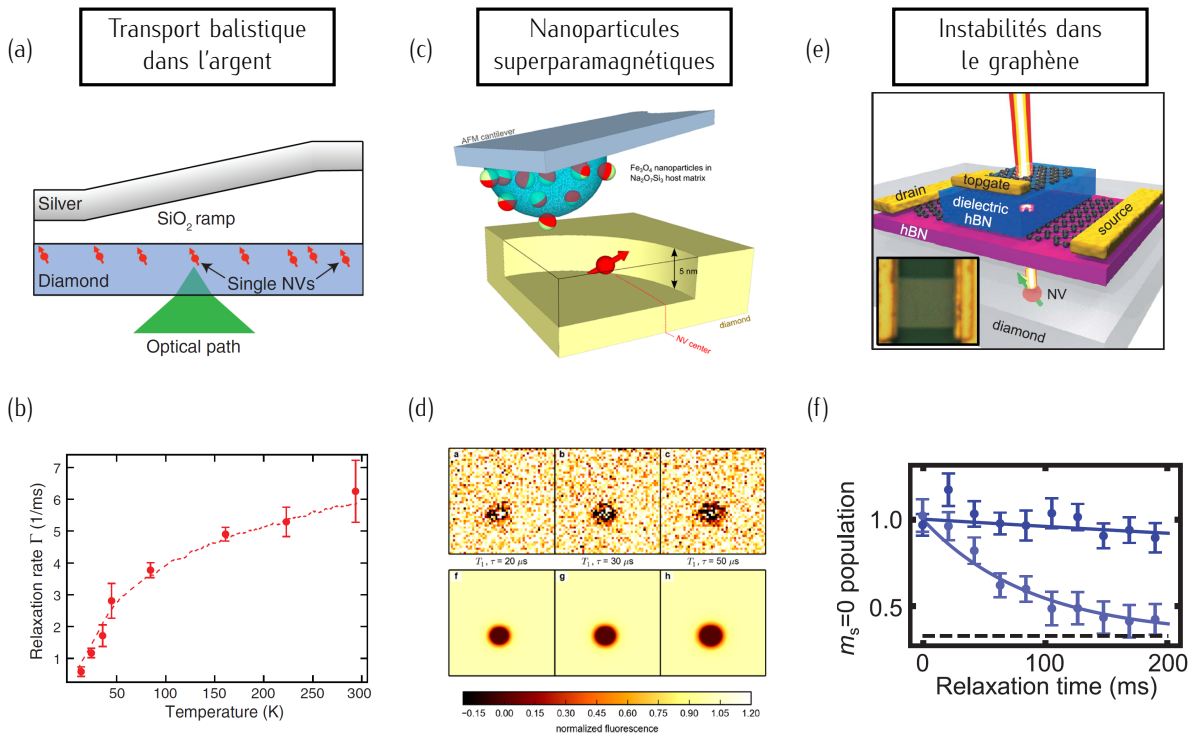


FIGURE 3.3 – (a)–(b) Caractérisation du transport balistique dans l'argent extraite de la référence [249]. (c)–(d) Mesures sur des nanoparticules superparamagnétiques (Magnétite) extraites de la référence [230]. (e)–(f) Études des instabilités dans le graphène extraites de la référence [255].

L'utilisation de la relaxométrie NV dans un microscope NV à balayage a commencé en 2018 dans le groupe d'A. Bleszynski Jayich [250]. Dans cette étude, des nano-plots en aluminium sont déposés au bout d'une pointe en silicium qui est balayée au-dessus d'un pilier en diamant contenant un centre unique. Ce mode d'imagerie permet de réaliser des cartographies quantitatives du temps de relaxation  $T_1$  avec une résolution spatiale nanométrique (voir Figure 3.4).

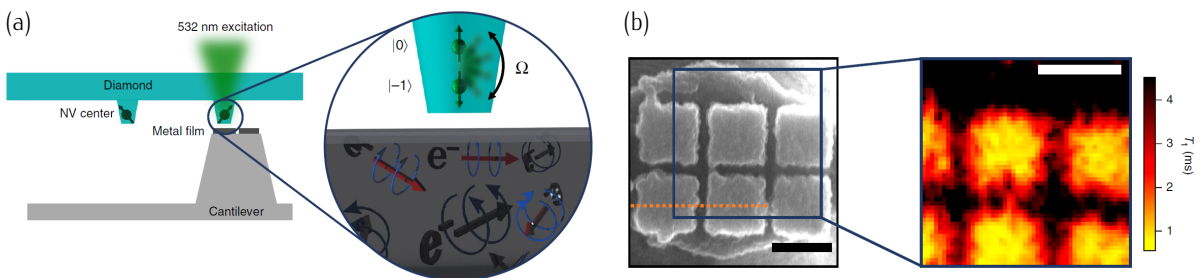


FIGURE 3.4 – (a)–(b) Cartographie quantitative du temps de relaxation  $T_1$  d'un centre NV dans une pointe en diamant engagée sur des couches d'aluminium déposées sur des pointes de microscope à force atomique extraite de la référence [250].

Le problème majeur de cette technique est la durée de la mesure de  $T_1$ , qui peut atteindre plusieurs dizaines de minutes à répéter en chaque pixel de l'image. Ce mode d'imagerie quantitatif de  $T_1$  est



donc assez peu efficace. Afin d'éviter ce problème, une méthode de mesure non quantitative détaillée dans la [Sous-Partie 3.3.3](#), communément appelée la mesure à un  $\tau$  unique, a été développée afin de rapidement détecter les sources de bruit magnétique [214, 230, 252]. Dans la suite du chapitre, je présenterai un second protocole de mesure non quantitatif mais qui a l'avantage de ne nécessiter qu'une simple mesure de la photoluminescence du centre NV, ce qui la rend très facile à mettre en place dans un microscope à balayage.

### 3.1.2 Effet du bruit magnétique sur la photophysique du centre NV

On commence par décrire les propriétés photophysiques du centre NV en présence d'un bruit magnétique. Pour cela, on va reprendre le modèle simplifié à trois niveaux d'énergie. Dans le cas d'une excitation laser continue, la dynamique du spin ne peut pas seulement être expliquée par le taux de relaxation, on doit aussi prendre en compte la polarisation induite par le laser d'excitation. Elle correspond à un transfert des populations des états  $m_s = \pm 1$  vers l'état  $m_s = 0$ . On considère donc, dans ce modèle, une compétition entre la relaxation vers l'équilibre, caractérisée par  $\Gamma_1$  et le pompage optique caractérisé par  $\Gamma_p$  (voir [Figure 3.5](#)). Le taux de polarisation  $\Gamma_p$  suit un comportement de saturation en fonction de la puissance optique  $\mathcal{P}_{\text{opt}}$  [114] :

$$\Gamma_p = \Gamma_p^\infty \frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{opt}} + \mathcal{P}_{\text{sat}}} \quad (3.13)$$

avec  $\Gamma_p^\infty$  le taux de polarisation à saturation lorsque  $\mathcal{P}_{\text{opt}} \gg \mathcal{P}_{\text{sat}}$  et  $\mathcal{P}_{\text{sat}}$  la puissance du laser à saturation. La valeur de  $\Gamma_p^\infty \approx 5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  est fixée par le temps de vie de l'état métastable (non inclus dans le modèle) qui est de l'ordre de 200 ns à température ambiante [80].

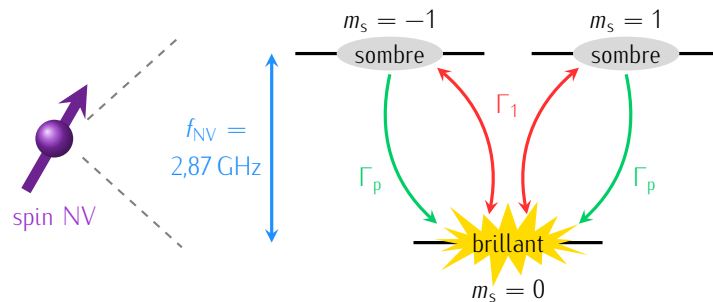


FIGURE 3.5 – Schéma du modèle à trois niveaux décrivant le centre NV. On considère uniquement l'état fondamental du centre NV, sans champ magnétique statique externe. Deux contributions sont prises en compte : le taux de polarisation  $\Gamma_p$  (qui décrit le pompage optique du laser vers l'état  $m_s = 0$ ) et le taux de relaxation  $\Gamma_1$ .

En prenant en compte les contributions du taux de polarisation et du taux de relaxation, les populations sont décrites par les équations suivantes :

$$\begin{cases} \frac{dn_0(t)}{dt} = \Gamma_1 \left( n_1(t) + n_{-1}(t) - 2n_0(t) \right) + \Gamma_p \left( n_1(t) + n_{-1}(t) \right) \\ \frac{dn_1(t)}{dt} = \Gamma_1 \left( n_0(t) - n_1(t) \right) \\ \frac{dn_{-1}(t)}{dt} = \Gamma_1 \left( n_0(t) - n_{-1}(t) \right) \end{cases} \quad (3.14)$$

Dans le régime stationnaire,  $\frac{dn_0(t)}{dt} = \frac{dn_{-1}(t)}{dt} = \frac{dn_1(t)}{dt} = 0$ , on obtient donc :

$$n_0(t) = \frac{\Gamma_1 + \Gamma_p}{3\Gamma_1 + \Gamma_p} \quad (3.15)$$

Par ailleurs, le taux de comptage  $\mathcal{R}_{\text{cw}}$  de photons émis par le centre NV dépend des populations  $n_0$  de l'état  $m_s = 0$  mais aussi des populations  $n_{\pm 1}$  des états  $m_s = \pm 1$  et peut s'exprimer comme :

$$\mathcal{R}_{\text{cw}} = n_0(t)\mathcal{R}_0 + \mathcal{R}_{\pm 1} \left( n_{-1}(t) + n_1(t) \right) \quad (3.16)$$

avec  $\mathcal{R}_0$  et  $\mathcal{R}_{\pm 1}$  les taux de comptage détectés lorsque le centre NV se trouve dans les états  $m_s = 0$  et  $m_s = \pm 1$  respectivement.

De plus ces taux de comptage suivent aussi un comportement de saturation avec la puissance optique. Le taux de comptage  $\mathcal{R}_i$  peut aussi s'écrire comme suit :

$$\mathcal{R}_i = \mathcal{R}_i^\infty \frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{opt}} + \mathcal{P}_{\text{sat}}} \quad (3.17)$$

avec  $i \in \{0, \pm 1\}$  et  $\mathcal{R}_i^\infty$  le taux de comptage à la puissance de saturation.

La réponse de la photoluminescence du défaut est ici introduite de manière phénoménologique en considérant  $\mathcal{R}_0 = \beta \mathcal{R}_{\pm 1}$  avec  $\beta < 1$  afin de prendre en considération le fait que les états  $m_s = \pm 1$  sont des états sombres comparés à l'état  $m_s = 0$  (Chapitre 1). En résolvant les équations du système à trois niveaux on peut finalement montrer que le taux de comptage (ou photoluminescence) émis par le défaut peut s'écrire :

$$\mathcal{R}_{\text{cw}} = \mathcal{R}_0 \frac{(1 + 2\beta)\Gamma_1 + \Gamma_p}{3\Gamma_1 + \Gamma_p} \quad (3.18)$$

Si on se penche sur l'évolution de la photoluminescence en fonction du temps de relaxation  $T_1$  calculée d'après l'équation 3.18, on peut distinguer alors deux cas extrêmes (voir Figure 3.6). Dans le premier cas, lorsque le taux de relaxation  $\Gamma_1$  est faible devant le taux de polarisation  $\Gamma_p$  ( $\Gamma_1 \ll \Gamma_p$ ), le système est polarisé efficacement dans l'état brillant  $m_s = 0$ . Dans ce régime, le niveau de photoluminescence du centre NV est à son maximum (voir Figure 3.6). En revanche, lorsque le taux de polarisation  $\Gamma_p$  est grand devant le taux de relaxation  $\Gamma_1$  ( $\Gamma_1 \gg \Gamma_p$ ) la polarisation devient moins efficace. Ceci se traduit par une perte de photoluminescence résultant d'une répartition des

populations non plus uniquement dans l'état brillant  $m_s = 0$  mais aussi dans les états sombres  $m_s = \pm 1$  (voir Figure 3.6).

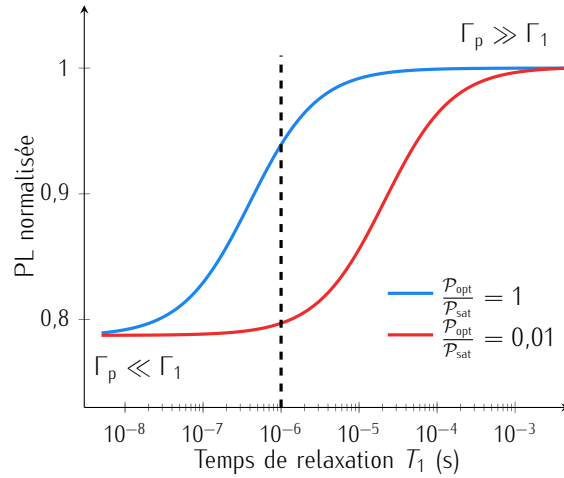


FIGURE 3.6 – Évolution de la photoluminescence en fonction du temps de relaxation  $T_1$  calculée par le modèle simplifié du centre NV. Les courbes rouge et bleue montrent les prédictions de la photoluminescence pour respectivement  $\frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{sat}} = 0,01$  et  $\frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{sat}} = 1$ . La ligne en pointillé indique la différence dans le niveau de photoluminescence pour un temps de relaxation  $T_1 = 1 \mu s$ .

Par ailleurs, si maintenant on compare l'évolution de la photoluminescence pour deux puissances optiques différentes, on observe que la chute de photoluminescence se décale vers les temps de relaxation  $T_1$  plus courts lorsque la puissance optique augmente. Ceci s'explique par le fait que lorsque le taux de polarisation  $\Gamma_p$  augmente, il est nécessaire de compenser cette polarisation par un taux de relaxation  $\Gamma_1$  plus important afin d'atteindre le régime de plus faible photoluminescence. Autrement dit, la photoluminescence varie en fonction de la puissance optique pour un temps de relaxation donné. Par exemple, pour  $T_1 = 1 \mu s$ , on voit que pour  $\frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{sat}} = 1$  la chute de photoluminescence par rapport au régime de photoluminescence maximale est d'environ 7% tandis que pour  $\frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{sat}} = 0,01$ , cette chute est de 23% (voir Figure 3.6).

Ce modèle simplifié du centre NV montre donc une évolution de la photoluminescence émise en fonction du temps de relaxation pour une puissance optique donnée. Or, on a montré que le temps de relaxation du centre NV est affecté par un bruit magnétique. L'idée du protocole de mesure que l'on propose est de sonder ces variations de photoluminescence afin de détecter les sources de bruit magnétique. Pour cela, la première étape est de caractériser quantitativement l'évolution du niveau de photoluminescence d'un centre NV en présence d'un bruit magnétique calibré afin de pouvoir confronter l'expérience avec le modèle simplifié à trois niveaux décrit jusqu'à maintenant. Je vais décrire cette étude dans la partie suivante.

## 3.2 Une source de bruit magnétique calbrée pour étudier la photophysique du centre NV

Dans cette partie, d'abord je vais décrire le dispositif expérimental, puis introduire la mise en place de la source de bruit magnétique calbrée réalisée avec la collaboration de T. Devolder au *Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N)*. Enfin, dans un second temps, je vais vérifier le fonctionnement de la source de bruit puis calbrer le temps de relaxation du centre NV en fonction de la composante transverse de la densité spectrale de bruit.

### 3.2.1 Configuration expérimentale

Pour réaliser l'étude quantitative de la photophysique du centre NV sous l'effet d'un champ magnétique fluctuant, plusieurs outils sont nécessaires. Tout d'abord, il faut pouvoir observer et mesurer la résonance magnétique du centre NV à l'aide d'un microscope confocal. Ensuite, il faut pouvoir générer et appliquer le bruit magnétique calbré. Pour finir, afin de sonder le temps de relaxation  $T_1$ , le laser doit pouvoir opérer en régime impulsionnel.

La première étape est de pouvoir exciter puis collecter la photoluminescence du centre NV dans un microscope confocal. Pour cela, on utilise un laser vert continu de longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm (*Laser Quantum gem 532*). Ce laser passe ensuite dans un modulateur acousto-optique MOA (*AA opto-electronic MT200-A0.5-VIS*) qui permet de produire des séquences d'impulsions laser avec un temps de montée pouvant atteindre 10 ns. Celles-ci sont déclenchées par générateur d'impulsion programmable (*PulseBlaster ESR PRO-400*). Le faisceau vert est réfléchi par un miroir dichroïque permettant de séparer l'excitation de la collection. Il est ensuite focalisé par un objectif de microscope à immersion de grande ouverture numérique (*Objectif Olympus UPLSAPO 60XO, N.A = 1,35*) sur l'échantillon. Ce dernier est positionné sur une platine piézoélectrique 3 axes, ce qui permet un contrôle de la position suivant les trois directions de l'espace. La photoluminescence est collectée par le même objectif de microscope et est transmise par le miroir dichroïque puis est focalisée dans un trou de diamètre 50  $\mu\text{m}$  servant de trou de confocalité. On sélectionne spectralement la photoluminescence avec un filtre interférentiel (*BrightLine<sup>®</sup> Semrock FF01-709/167-25*) de longueur d'onde centrale  $\lambda = 709$  nm et une largeur spectrale de 167 nm. Cela permet notamment de collecter uniquement la photoluminescence du centre NV tout en retirant toute la lumière résiduelle en dehors de la bande d'émission du défaut. La photoluminescence du centre NV est finalement détectée à l'échelle du photon unique par des photodiodes à avalanche (*Excelitas technologies SPCM-AQR-14*) ainsi qu'un module de comptage résolu en temps (*FastComTech*) qui permettent de compter le nombre de

photons arrivant par seconde. Afin de manipuler l'état du spin du centre NV à l'aide d'une excitation micro-onde, l'échantillon de diamant est collé sur une plaque de circuit imprimé et un fil de cuivre de diamètre  $25\ \mu\text{m}$  est plaqué sur le diamant massif pour servir d'antenne. On connecte en entrée de ce porte échantillon un générateur micro-onde (*Rohde & Schwarz SMB100A*) et en sortie une résistance  $50\ \Omega$ , afin de manipuler le spin électronique du centre NV et ainsi d'accéder au spectre de résonance magnétique par détection optique (ODMR).

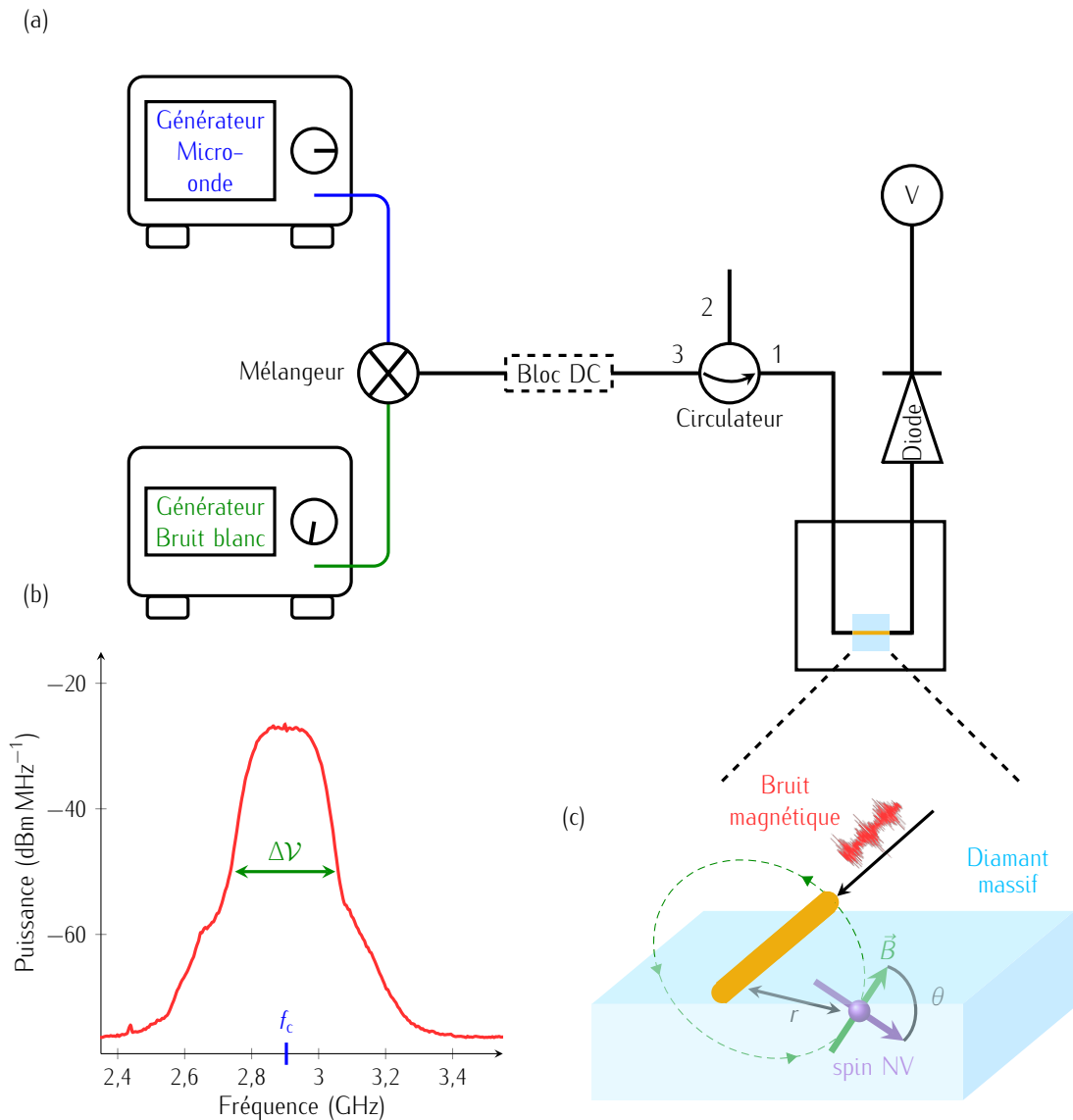


FIGURE 3.7 – (a) Schéma du montage permettant de générer un signal de bruit sous forme d'un courant, puis de l'envoyer dans un fil de cuivre se trouvant sur un diamant massif afin de le convertir en un champ magnétique fluctuant à la position du centre NV. (b) Spectre de puissance du signal de bruit enregistré par un analyseur de spectre. (c) Schéma détaillé au niveau de l'échantillon et du centre NV.

Pour étudier l'impact du bruit magnétique sur le spin du centre NV, le signal venant du générateur micro-onde est mélangé avec un bruit blanc venant d'un générateur de basses fréquences

(Keysight 33621A). Ce signal est un bruit avec un profil centré autour de la fréquence zéro et une densité spectrale constante sur un certain intervalle de fréquence. Un mélangeur va décaler cette plage de fréquence autour de la fréquence définie par le générateur micro-onde (voir Figure 3.7 (a)). On peut voir ce signal enregistré par un analyseur de spectre sur la figure 3.7 (b). Ce bruit est caractérisé par trois paramètres contrôlables : la largeur spectrale  $\Delta\nu$  (ajustable entre 0 – 100 MHz) ainsi que l'amplitude (ajustable entre 0 – 4 Vpp) peuvent être modifiées par le générateur de basses fréquences tandis que la fréquence centrale  $f_c$ , est contrôlée par le générateur micro-onde (ajusté autour de la fréquence de résonance du centre NV soit  $f_{\text{NV}} = 2,87 \text{ GHz}$ ). Ce signal de sortie est envoyé dans un bloc DC servant à filtrer les composantes continues (DC). Finalement, le bruit est envoyé dans un circulateur qui ne laisse passer que les fréquences entre 2 – 4 GHz, ce qui permet de réduire considérablement l'impact de la seconde harmonique. Il est ensuite envoyé dans le fil de cuivre se trouvant sur l'échantillon afin de générer un champ magnétique fluctuant d'Oersted dans l'environnement du centre NV d'intérêt (voir Figure 3.7 (c)). La résistance  $50 \Omega$  normalement présente lors de la mesure de la résonance magnétique est retirée afin de positionner une diode (Hewlett Packard HP Crystal Detector 423A (NEG)) d'impédance d'entrée  $50 \Omega$ , permettant d'évaluer la puissance du bruit délivrée en mesurant sa tension (voir Figure 3.7 (a)).

### 3.2.2 Procédure expérimentale de mesure du temps de relaxation $T_1$

La mesure du temps de relaxation  $T_1$  a été décrite dans le Chapitre 1. Pour accéder à cette grandeur, une séquence composée de deux impulsions laser est utilisée. La première impulsion laser initialise le système dans l'état  $m_s = 0$  puis celui-ci va évoluer dans le noir pendant un temps d'attente  $\tau$  variable. Durant cette durée, le système relaxe en induisant des transitions entre l'état  $m_s = 0$  et les états  $m_s = \pm 1$  afin de revenir à son état d'équilibre thermodynamique. Enfin, la seconde impulsion laser permet de sonder l'état de spin final. Cette séquence est reproduite en faisant varier le temps d'attente  $\tau$  et en répétant cette procédure un grand nombre de fois pour améliorer le rapport signal sur bruit.

L'impulsion de lecture est divisée en deux parties distinctes. Le début de l'impulsion est le régime transitoire qui dépend de la répartition des populations du centre NV. Ce régime dure environ 300 ns et c'est donc dans cette durée que l'on trouve le signal d'intérêt. La seconde partie de l'impulsion correspond au régime stationnaire qui est le niveau de photoluminescence lorsque le système est repolarisé dans l'état  $m_s = 0$  et se situe à la fin de l'impulsion de lecture. Afin d'extraire l'information concernant l'état de spin final du système, le signal du régime transitoire est intégré puis normalisé par le signal intégré dans le régime stationnaire pour chaque temps d'attente  $\tau$ . Ce signal normalisé décroît exponentiellement avec un temps caractéristique qui est directement la valeur de  $T_1$  (voir Figure 3.8). Autrement dit, pour des valeurs de  $\tau$  faibles, les populations sont majoritairement dans

l'état  $m_s = 0$  donc on obtient le maximum de photoluminescence. En revanche, lorsque  $\tau$  est plus grand que  $T_1$ , le système est retourné dans son état d'équilibre thermodynamique, ce qui correspond à une distribution équivalente des populations dans les trois niveaux d'énergie et donc à un plus faible taux de photoluminescence.

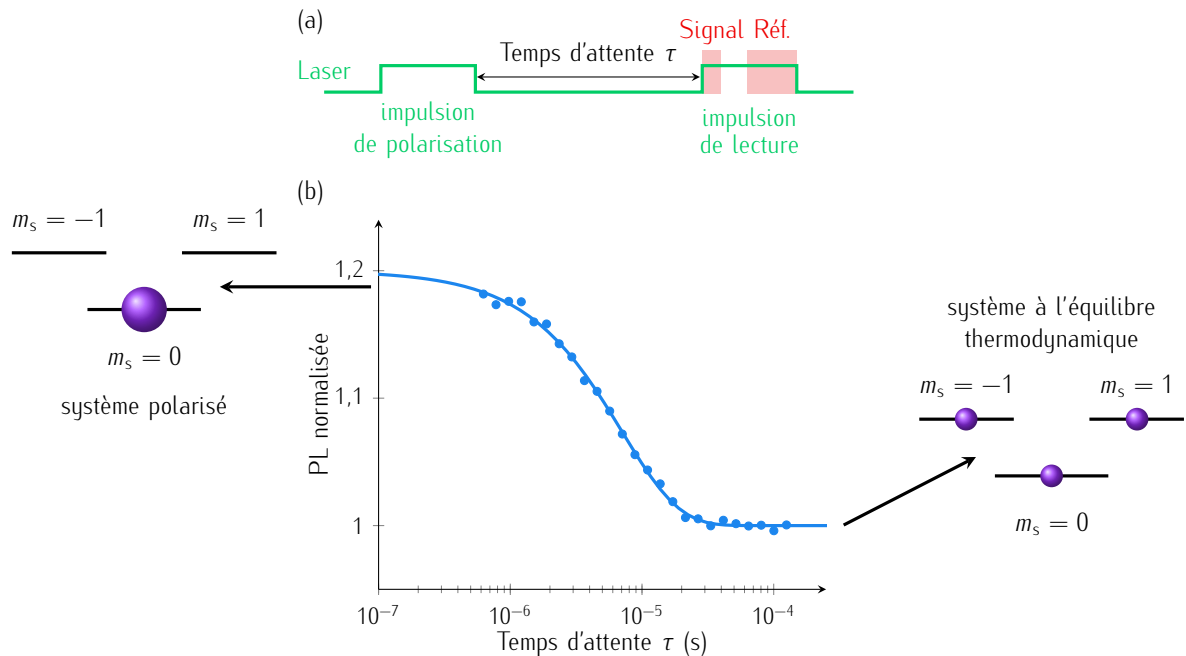


FIGURE 3.8 – (a) Séquence de mesure de  $T_1$ . La première impulsion polarise le système dans l'état  $m_s = 0$  puis celui-ci évolue dans le noir pendant un temps d'attente variable  $\tau$ . Enfin, la seconde impulsion permet d'abord de lire l'état de spin final du système et ensuite de repolariser le spin dans l'état  $m_s = 0$ . (b) Exemple d'une courbe de relaxation pour un temps d'environ  $T_1 \approx 7 \mu\text{s}$ .

### 3.2.3 Calibration du temps de relaxation $T_1$ avec la source de bruit magnétique

Dans les expériences présentées ici, on va sélectionner un centre NV se trouvant à une profondeur de plusieurs micromètres afin de négliger les interactions avec la surface. En effet, pour des centres NV très proches de celle-ci, la présence d'impuretés magnétiques induit une diminution du temps de relaxation [262]. De plus, on a fait le choix de ne pas utiliser un aimant externe pour séparer les niveaux d'énergie  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$ . Dans ce cas, ces deux niveaux d'énergie sont très proches et séparés uniquement par l'influence du champ magnétique terrestre qui est négligeable dans cette expérience. On peut voir sur l'image confocale l'ombre du fil de cuivre sur la partie haute (voir Figure 3.9 (a)). Il est nécessaire de se trouver proche du fil afin que le champ magnétique fluctuant soit assez intense pour influencer le centre NV. Par ailleurs, on peut faire un zoom de la zone

d'intérêt et on voit plusieurs points brillants correspondant à plusieurs centres NV uniques (voir Figure 3.9 (b)). On choisit un centre isolé et on mesure son spectre de résonance magnétique pour connaître sa fréquence de résonance. En effet, dans la partie précédente (voir Sous-Partie 3.1.1), on a vu que seules les composantes de bruit à la fréquence de résonance induisent une accélération de la relaxation de spin du centre NV. Dans le cas présent, la fréquence de résonance magnétique du centre NV sélectionné est de  $f_{NV} = 2,87$  GHz qui est la valeur typique à température ambiante (voir Figure 3.9 (c)).

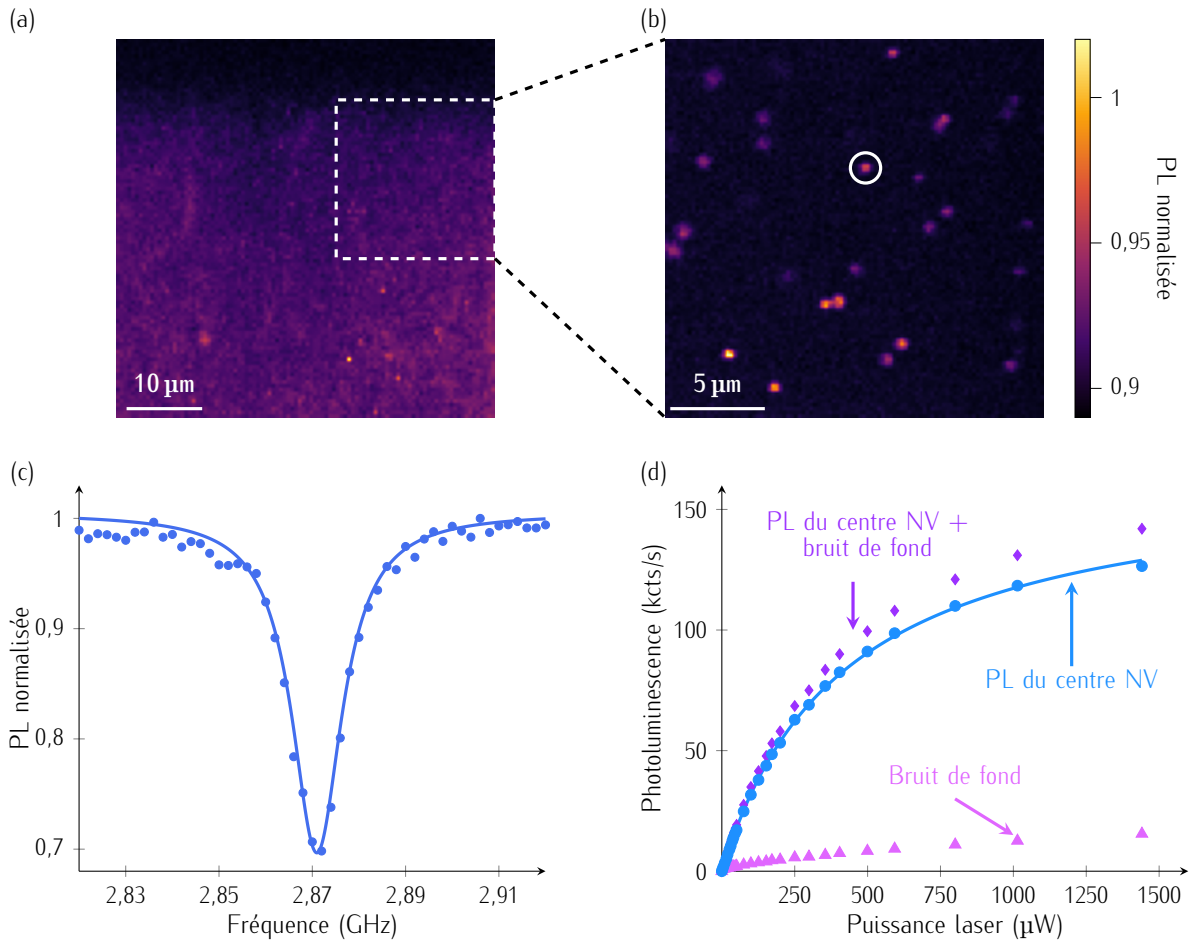


FIGURE 3.9 – (a) Image confocale permettant de voir l'ombre du fil de cuivre sur la partie haute. (b) Image confocale correspondant au carré blanc de l'image (a). Les points brillants correspondent à des centres NV uniques. Le cercle blanc montre le centre NV utilisé dans toutes les expériences de ce chapitre. (c) Spectre de résonance magnétique du centre NV d'intérêt. (d) Évolution de la photoluminescence du centre NV en fonction de la puissance optique. Dans le cas présent,  $\mathcal{P}_{sat} = 419 \mu\text{W}$ .

Le taux de polarisation  $\Gamma_p$  défini dans le modèle dépend de la puissance optique d'excitation  $\mathcal{P}_{opt}$  mais aussi de la puissance de saturation  $\mathcal{P}_{sat}$  du centre NV. Pour déterminer cette valeur, on mesure au préalable la photoluminescence  $\mathcal{I}$  du centre NV en fonction de la puissance optique  $\mathcal{P}_{opt}$  sans



appliquer de bruit magnétique. On peut ensuite extraire la valeur de  $\mathcal{P}_{\text{sat}} = 419 \mu\text{W}$  par la formule  $\mathcal{I} = \mathcal{I}_{\text{max}} \frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{(\mathcal{P}_{\text{opt}} + \mathcal{P}_{\text{sat}})}$  (voir Figure 3.9 (d)).

Dans un premier temps, pour confirmer que la source de bruit magnétique est fonctionnelle, on commence par générer un bruit magnétique à la fréquence de résonance du centre NV. Pour cela, on va choisir comme fréquence centrale  $f_c = f_{\text{NV}} = 2,87 \text{ GHz}$ , une largeur  $\Delta\nu = 50 \text{ MHz}$  et l'amplitude maximale possible (soit 4 Vpp). La mesure du temps de relaxation est réalisée avec des impulsions laser de durée 3  $\mu\text{s}$ . Lorsque l'on compare le temps de relaxation  $T_1^0$  intrinsèque du centre NV sans le bruit magnétique avec le temps de relaxation en présence du bruit magnétique, on observe une nette diminution de celui-ci. En effet, en présence de bruit magnétique, le temps caractéristique  $T_1^0$  initialement de  $6,9 \pm 0,6 \text{ ms}$  est réduit à  $7,0 \pm 0,3 \mu\text{s}$ . Soit une diminution du temps de relaxation de trois ordres de grandeurs (voir Figure 3.10).

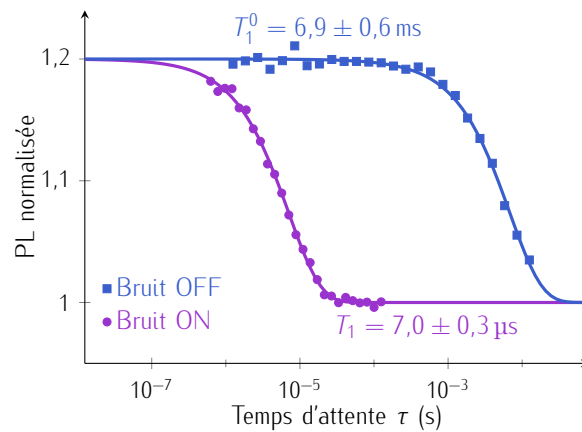


FIGURE 3.10 – Mesures de  $T_1$  du centre NV d'intérêt en présence et absence de bruit magnétique.

Dans une seconde étape, la fréquence centrale  $f_c$  est modifiée entre 2,54 GHz jusqu'à 3,2 GHz en conservant la largeur spectrale  $\Delta\nu = 50 \text{ MHz}$  et en gardant fixe la puissance de bruit mesurée au niveau de la diode grâce à l'ajustement par l'amplitude du bruit blanc. Cette étape est nécessaire pour compenser les variations de la transmission avec la fréquence (voir Figure 3.11). Le temps de relaxation  $T_1$  dépend comme attendu de la position de la fenêtre de fréquence du bruit. Lorsque la fréquence centrale est de 2,87 GHz, la résonance du centre NV est centrée au centre de la fenêtre de bruit et la réduction du temps de relaxation est maximale. Plus on éloigne la fréquence centrale de la fréquence de résonance du spin moins le temps de relaxation est réduit. Pour finir, lorsque la fenêtre de bruit est très éloignée de la fréquence de résonance du centre NV,  $T_1$  est le même qu'en l'absence de bruit magnétique.

Enfin, on utilise la source de bruit magnétique à la fréquence centrale  $f_c = 2,87 \text{ GHz}$  avec une largeur spectrale  $\Delta\nu = 50 \text{ MHz}$  afin d'étudier l'évolution du temps de relaxation  $T_1$  en fonction de l'amplitude du bruit magnétique. Pour cela, on relie tout d'abord la tension mesurée par la diode

de détection et la densité spectrale de bruit. On considère que la longueur du fil est suffisamment grande (quelques mm) pour négliger les effets liés à la longueur finie du fil. Dans ce cas, pour un fil infini, l'épaisseur du fil ne joue pas de rôle dans le champ magnétique généré. Par ailleurs, même dans notre cas où le courant est fluctuant, on suppose que l'on peut utiliser l'expression d'un champ magnétique généré par un fil infini. En effet, on peut analyser chaque composante de Fourier du signal séparément et alors supposer uniquement une variation sinusoïdale. La longueur d'onde du champ généré par l'antenne est :

$$\lambda = \frac{c}{f} \sim 10 \text{ cm} \quad (3.19)$$

avec  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide.

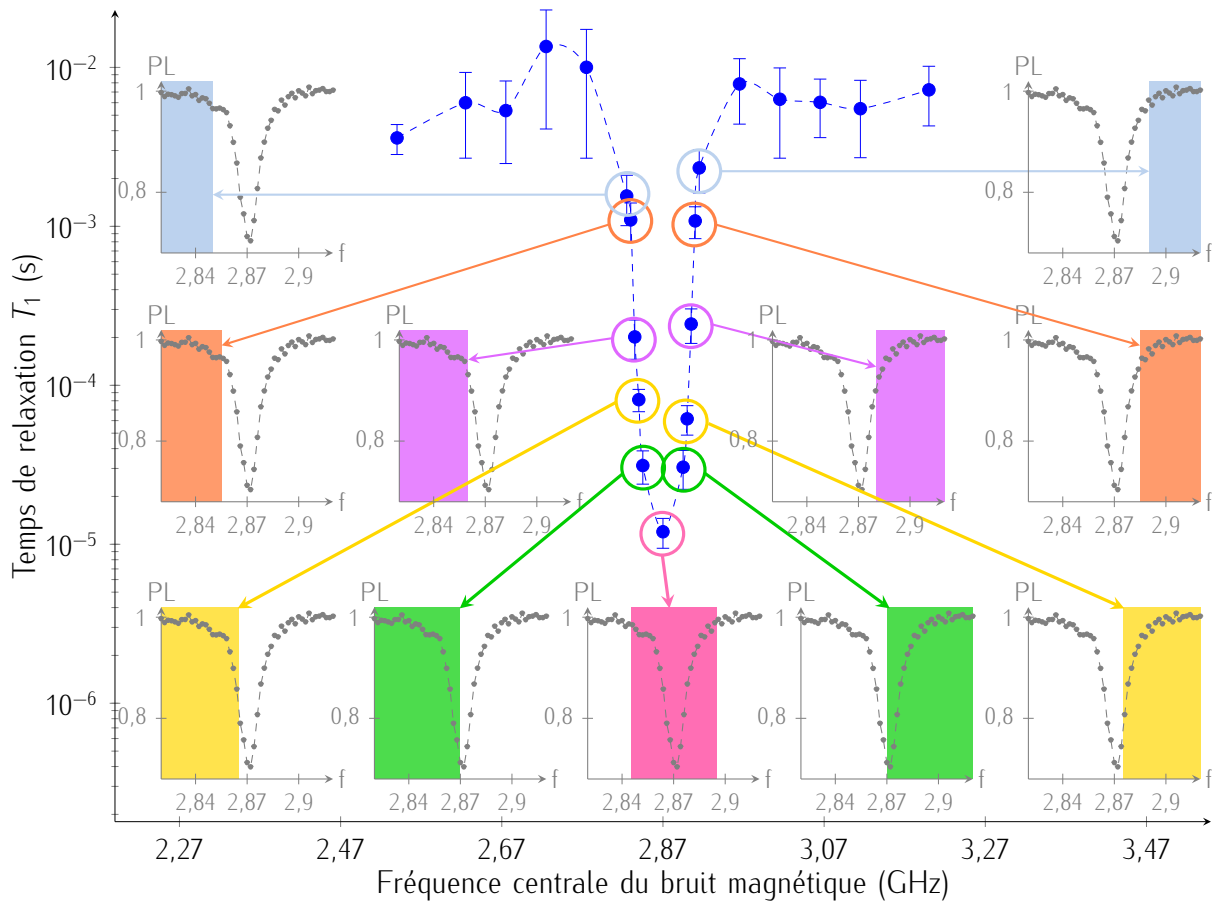


FIGURE 3.11 – Évolution de  $T_1$  en fonction de la fréquence centrale  $f_c$ . Les graphes insérés indiquent le recouvrement entre la résonance du centre NV et la plage de fréquence du bruit magnétique.

Comme le centre NV se trouve à une distance du fil très petite devant  $\lambda$ , on peut conserver cette approximation. La variance du champ magnétique fluctuant produit par le courant fluctuant caractérisé par une variance  $\langle I^2 \rangle$  à une distance  $r$  du fil suit alors la loi d'Oersted :

$$\langle B^2 \rangle = \frac{\mu_0^2 \langle I^2 \rangle}{4\pi^2 r^2} \quad (3.20)$$

avec  $\mu_0$  la permittivité du vide.

De plus, comme la puissance est constante dans tout l'intervalle de fréquence  $\Delta\nu$ , la densité spectrale est définie par :

$$S_B = \frac{\langle B^2 \rangle}{\Delta f} = \frac{\mu_0^2 \langle I^2 \rangle}{4\pi^2 r^2 \Delta\nu} \quad (3.21)$$

On calibre la diode en la branchant directement sur un générateur qui délivre une puissance connue pour trouver le paramètre  $\alpha$  tel que  $P = \alpha V_{\text{diode}}$ . La mesure donne finalement  $\alpha = 0,0125 \text{ WV}^{-1}$ . Avec  $P = R \langle I^2 \rangle$  (pour  $R = 50 \Omega$ ) on peut réécrire l'équation précédente :

$$S_B = \frac{\mu_0^2 \alpha V_{\text{diode}}}{4\pi^2 r^2 R \Delta\nu} \quad (3.22)$$

Finalement, si on considère l'angle  $\theta$  entre le champ magnétique  $\mathbf{B}$  et l'axe de quantification du centre NV, on peut déterminer la dépendance de la densité spectrale transverse  $S_{B_\perp}$  en fonction de la tension mesurée par la diode :

$$S_{B_\perp} = \sin^2 \theta \frac{\mu_0^2 \alpha V_{\text{diode}}}{4\pi^2 r^2 R \Delta\nu} \quad (3.23)$$

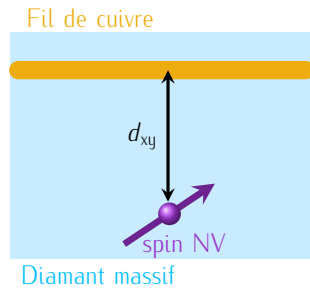


FIGURE 3.12 – Schéma de la position du centre NV par rapport au fil vu du dessus.

La composante transverse  $S_{B_\perp}$  est inversement proportionnelle au carré de la distance  $r$  du centre NV au fil de cuivre qu'il faut donc connaître. Pour la mesurer, on utilise les scanners du microscope confocal. D'après la Figure 3.12, on peut estimer la distance dans le plan (XY)  $d_{xy} = 18 \pm 2 \mu\text{m}$ . De plus, on a mesuré la profondeur du centre NV par rapport à la surface :  $d_z = 4 \pm 1 \mu\text{m}$  (voir Figure 3.13).

En prenant en compte que, d'après les données du fabricant, le diamètre du fil de cuivre est  $25 \pm 2,5 \mu\text{m}$ , on conclut que la distance réelle du centre NV au fil de cuivre est  $r = 28 \pm 4 \mu\text{m}$ .

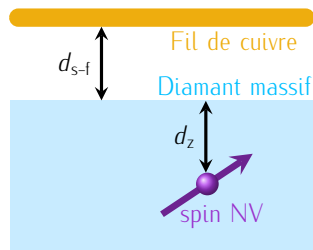


FIGURE 3.13 – Schéma de la position du centre NV par rapport au fil vu de côté

Cependant, le fil de cuivre n'est jamais parfaitement collé à la surface du diamant et donc il y a toujours un écart entre la surface et celui-ci (voir Figure 3.13). En utilisant le microscope confocal et en ajustant le plan confocal, on a évalué la distance surface-fil de cuivre à  $d_{s-f} = 5 \pm 1 \mu\text{m}$ .

En ce qui concerne l'angle  $\theta$ , l'orientation du champ magnétique n'étant pas connue précisément, on va le considérer comme un paramètre libre. On peut toutefois estimer grossièrement la valeur attendue. En supposant que le fil de cuivre est parfaitement aligné à la direction [100] et en connaissant la position du centre NV par rapport à celui-ci, on peut déterminer l'angle  $\gamma$  entre l'axe [001] et le champ magnétique généré  $\mathbf{B}$  indiqué sur la figure 3.14. On trouve un angle de  $-50^\circ$ . De plus, les angles  $\theta$  attendus pour les huit orientations possibles du centre NV dans le diamant sont regroupés dans le tableau 3.1.

axe NV	[1-11] [-1-11]	[1-1-1] [-1-1-1]	[111] [-111]	[11-1] [-11-1]
$\theta$ (°)	36	86	94	144

TABLE 3.1 – Mesure de l'angle entre le champ magnétique  $\mathbf{B}$  généré par le courant dans le fil de cuivre et les différentes orientations de l'axe de quantification du centre NV dans le diamant massif.

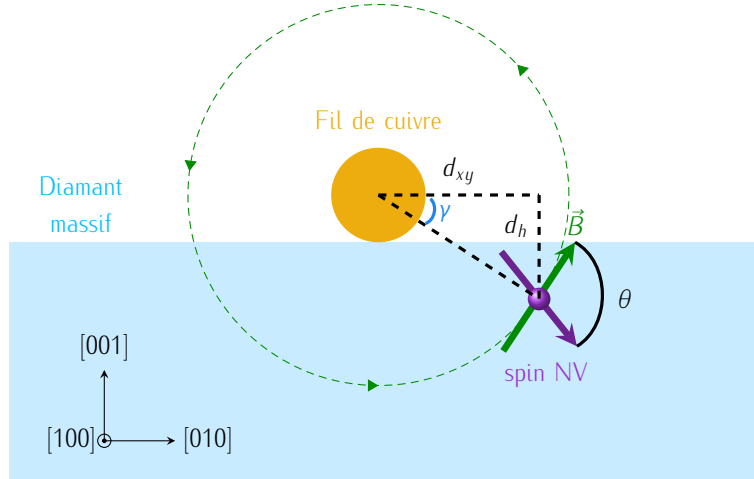


FIGURE 3.14 – Schéma montrant le fil de cuivre sur le diamant massif et les lignes de champ magnétique  $\mathbf{B}$  générées par le courant dans le fil de cuivre. On retrouve ici la distance  $d_h$  qui est la distance suivant l'axe  $z$  ( $[001]$ ) du centre NV avec le fil de cuivre ainsi que la distance  $d_{xy}$ . Cette distance  $d_h = d_z + d_{s-f} = 21,5 \mu\text{m}$ . L'angle  $\gamma$  peut être déterminé par les distances  $d_h$  et  $d_{xy}$  et correspond à l'angle entre le champ magnétique  $\mathbf{B}$  généré par le courant dans le fil de cuivre et l'axe  $[001]$ .

On mesure ensuite la dépendance de  $T_1$  en fonction de la composante transverse  $S_{B_\perp}$ . Pour cela, on applique le bruit magnétique à la fréquence centrale  $f_c = f_{\text{NV}}$  avec une largeur spectrale  $\Delta\nu = 50 \text{ MHz}$  en variant son amplitude et par conséquent la densité spectrale de bruit. De plus, on rappelle que le temps de relaxation  $T_1$  est donné par la relation suivante :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^0} + 3\gamma^2 S_{B_\perp}(f_{\text{NV}}) \quad (3.24)$$

En mesurant le temps de relaxation pour chaque valeur de  $S_{B_\perp}$ , on retrouve bien sa dépendance linéaire (voir Figure 3.15). L'erreur importante sur la densité spectrale de bruit  $\delta S_B = \frac{2S_B \delta r}{r^3}$  vient majoritairement de l'erreur sur la distance  $r$  du centre NV au centre du fil de cuivre. Par ailleurs, on détermine l'angle entre le champ magnétique généré par le fil de cuivre  $\mathbf{B}$  et l'axe du centre NV en utilisant l'équation 3.23 et on trouve  $\theta_{\text{exp}} = 41^\circ$ . D'après le tableau 3.1, on voit que deux familles de NV ayant des axes de quantifications suivant  $[1-11]$  et  $[-1-11]$  ont un angle  $\theta = 36^\circ$ , ce qui est assez proche de  $\theta_{\text{exp}}$  si on considère l'hypothèse probablement erronée que le fil est parfaitement aligné suivant la direction  $[100]$ .

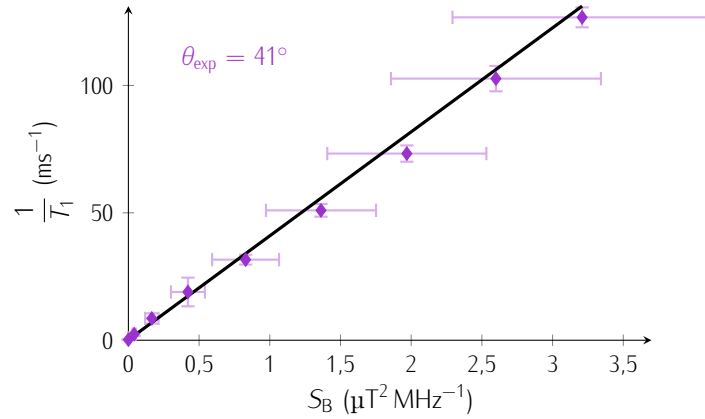


FIGURE 3.15 – Évolution de  $\frac{1}{T_1}$  en fonction de la densité spectrale de bruit  $S_B$ .

Cette calibration quantitative nous permet par la suite de faire varier le temps de relaxation  $T_1$  du centre NV en modifiant l'amplitude du bruit magnétique appliqué. On va l'utiliser maintenant pour étudier l'évolution de la photoluminescence du centre NV en fonction du temps de relaxation.

### 3.3 Validation expérimentale du modèle à trois niveaux

Dans cette partie, je vais d'abord me pencher sur l'étude de la réponse de la photoluminescence du centre NV en fonction de son temps de relaxation  $T_1$ . Cette évolution expérimentale de la photoluminescence du centre NV est ensuite confrontée au modèle simplifié à trois niveaux. Enfin, je vais estimer la sensibilité de ce protocole de mesure et la comparer à la technique de mesure communément utilisée (la mesure à un  $\tau$  unique).

#### 3.3.1 Évolution des propriétés photophysiques du centre NV

On commence par étudier l'évolution de la photoluminescence du centre NV en fonction du temps de relaxation  $T_1$ . Pour différentes valeurs de  $\mathcal{P}_{opt}$ , une mesure de la photoluminescence en fonction de  $T_1$  est réalisée. Pour cela, on utilise une séquence pulsée composée de deux impulsions laser de 1 ms séparées par un temps d'attente de 50  $\mu s$ . Durant la première impulsion laser, uniquement celui-ci est allumé tandis que durant la seconde, on applique également le bruit magnétique (voir Figure 3.16 (a)). En comparant le signal de photoluminescence entre les deux impulsions et en répétant la procédure pour différentes valeurs d'amplitude de bruit, on peut relier le niveau de la photoluminescence du centre NV à  $T_1$ . La figure 3.16 (b) présente les courbes obtenues pour différentes valeurs de  $\frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{sat}}$  entre 0,6 % à 9,8 %. On remarque, dans un premier temps, que la photoluminescence est maximale pour les grandes valeurs de  $T_1$  puisque cette photoluminescence commence à chuter lorsque  $T_1$

diminue. De plus, on observe un décalage de la chute de photoluminescence vers les valeurs de  $T_1$  plus courtes pour des puissances optiques croissantes comme prédit par le modèle à trois niveaux détaillé dans la [Sous-Partie 3.1.2](#). Ces expériences confirment donc la validité de notre modèle simplifié à trois niveaux. Les lignes continues sont calculées par l'équation 3.18 issue du modèle à trois niveaux pour  $\beta = 0,68$ , paramètre qui est optimisé en se basant sur les données expérimentales et qui est compatible avec un contraste sur le spectre de résonance magnétique d'environ 30%. Pour les valeurs de  $T_1$  faibles, on observe cependant une différence entre les données expérimentales et la prédiction du modèle. Cette différence peut s'expliquer par le fait que, d'une part, le modèle ne considère que les niveaux d'énergie de l'état fondamental et que, d'autre part, il ne prend en compte que le taux de polarisation  $\Gamma_p$  et le taux de relaxation  $\Gamma_1$  qui ne sont probablement pas les seuls phénomènes physiques actifs dans le centre NV.

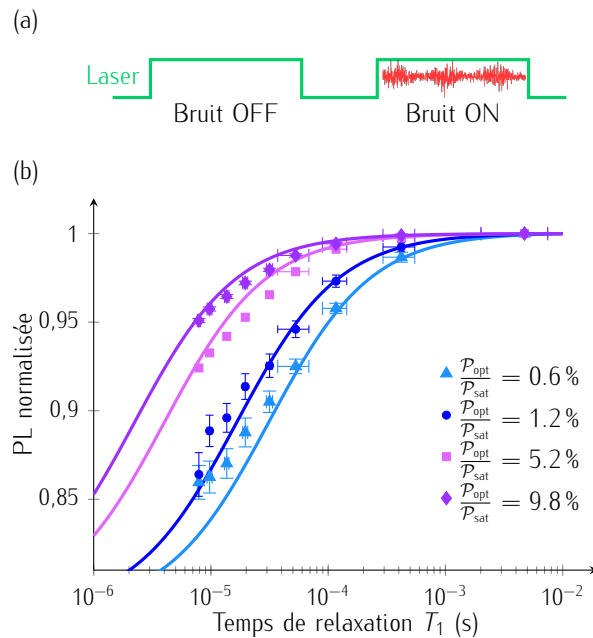


FIGURE 3.16 – (a) Schéma de la séquence utilisée afin de réaliser la mesure. (b) Évolution de la photoluminescence du centre NV en fonction de  $T_1$ . Ces résultats expérimentaux sont comparés aux prédictions du modèle à trois niveaux pour une valeur de  $\beta = 0,68$ .

Finalement, on a montré grâce à une source de bruit magnétique calibré qu'il était possible de sonder un bruit magnétique à l'aide du centre NV de manière totalement optique. On s'attend à observer un effet similaire sur les centres NV dans les pointes en diamant comme on pourra le voir dans la [Partie 3.4](#). On peut maintenant se pencher sur la sensibilité théorique qu'il est possible d'atteindre de cette façon.

### 3.3.2 Estimation de la sensibilité de cette technique

On considère un centre NV unique dans un environnement sans bruit magnétique. On a donc  $T_1 = T_1^0$  et on s'intéresse à l'effet d'une composante transverse de la densité de bruit infinitésimale  $\delta SB_{\perp}(f_{NV})$ . Cette contribution induit une réduction du temps de relaxation  $\delta T_1 = 3(T_1^0 \gamma)^2 \delta SB_{\perp}(f_{NV})$  (voir [équation 3.12](#)) qui est convertie en une variation du nombre de photons détectés  $\delta \mathcal{N}$ . La statistique du signal de photoluminescence est décrite par une distribution de Poisson, on écrit donc le bruit de grenaille  $\delta \mathcal{N}_s = \sqrt{\mathcal{N}}$ . Le rapport signal sur bruit SNR est alors défini par :

$$\text{SNR} = \frac{\delta \mathcal{N}}{\delta \mathcal{N}_s} = \frac{|\frac{\partial \mathcal{R}_{cw}}{\partial T_1}| \delta T_1 \Delta t}{\sqrt{\mathcal{R}_{cw} \Delta t}} \quad (3.25)$$

avec  $\mathcal{R}_{cw}$ , le taux de comptage émis par le défaut. Si on reprend [l'équation 3.18](#) en remplaçant  $\Gamma_1 = \frac{1}{3T_1}$  et l'expression (voir [équation 3.13](#)) de  $\Gamma_p$ , on peut écrire :

$$\mathcal{R}_{cw} = \mathcal{R}_0^{\infty} \frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{opt} + \mathcal{P}_{sat}} \frac{1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{opt} + \mathcal{P}_{sat}}}{3 + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{opt} + \mathcal{P}_{sat}}} \quad (3.26)$$

On pose  $\mathcal{X} = \frac{\mathcal{P}_{opt}}{\mathcal{P}_{opt} + \mathcal{P}_{sat}}$  et donc on peut écrire  $\frac{\partial \mathcal{R}_{cw}}{\partial T_1}$  comme :

$$\frac{\partial \mathcal{R}_{cw}}{\partial T_1} = \frac{2(1 - \beta) \mathcal{R}_0^{\infty} \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}^2}{3(1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X})^2} \quad (3.27)$$

On peut injecter cette expression dans [l'équation 3.25](#) et écrire :

$$\text{SNR} = \delta T_1 \sqrt{\mathcal{R}_0^{\infty} \Delta t} \frac{2\Gamma_p^{\infty} (1 - \beta)}{\sqrt{3}} \left( \frac{1}{1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} \right)^{1/2} \left( \frac{\mathcal{X}}{1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} \right)^{3/2} \quad (3.28)$$

On cherche la valeur de  $\mathcal{X}$  qui maximise la valeur de SNR. Pour cela, on calcule  $\frac{d\text{SNR}}{d\mathcal{X}}$  :

$$\frac{d\text{SNR}}{d\mathcal{X}} = \delta T_1 \sqrt{\mathcal{R}_0^{\infty} \Delta t} \frac{\mathcal{X}^{1/2}}{(1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X})^{3/2}} \frac{\sqrt{3} \Gamma_p^{\infty} (1 - \beta)}{(1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X})^{-1/2}} \left[ \frac{1}{1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} - \frac{T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}}{1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} \right] \quad (3.29)$$

On peut maintenant déterminer  $\mathcal{X}_{opti}$  qui maximise le SNR en calculant  $\frac{d\text{SNR}}{d\mathcal{X}} = 0$ , ce qui revient à :

$$\frac{1}{1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} - \frac{T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}}{1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} = 0 \quad (3.30)$$

Soit :

$$\frac{1}{1 + T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} = \frac{T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}}{1 + 2\beta + 3T_1 \Gamma_p^{\infty} \mathcal{X}} - \mathcal{X}^2 + \frac{2\mathcal{X}}{T_1 \Gamma_p^{\infty}} + \frac{1 + 2\beta}{(T_1 \Gamma_p^{\infty})^2} = 0 \quad (3.31)$$

On résout l'équation et on sélectionne la valeur  $\mathcal{X}_{\text{opti}}$  positive :

$$\mathcal{X}_{\text{opti}} = \frac{\mathcal{P}_{\text{opti}}}{\mathcal{P}_{\text{opti}} + \mathcal{P}_{\text{sat}}} = \frac{1 + \sqrt{2(1 + \beta)}}{T_1 \Gamma_p^\infty} \quad (3.32)$$

En remplaçant  $\mathcal{X}_{\text{opti}}$  dans l'équation 3.28, on peut déterminer le rapport signal sur bruit optimal  $\text{SNR}_{\text{opti}}$  :

$$\text{SNR}_{\text{opti}} = \delta T_1 \sqrt{\mathcal{R}_0^\infty \Delta t} \frac{2\Gamma_p^\infty (1 - \beta)}{\sqrt{3}} \left( \frac{1 + a}{(2 + a) T_1 \Gamma_p^\infty} \right)^{3/2} (4 + 2\beta + 3a)^{-1/2} \quad (3.33)$$

avec  $a = \sqrt{2(1 + \beta)}$ . On peut maintenant exprimer la sensibilité  $\eta_{\text{cw}}$  théorique de la mesure. Pour cela, on doit connaître la variation minimale  $\delta S_{B_\perp}^{\text{min}}$  qui peut être détectée. On détermine  $\delta S_{B_\perp}^{\text{min}}$  pour  $\delta T_1^{\text{min}}$  qui se calcule dans le cas  $\text{SNR}_{\text{opti}} = 1$  en prenant  $T_1 = T_1^0$ . On trouve :

$$\begin{aligned} \delta T_1^{\text{min}} &= 3 \frac{T_1^0 \sqrt{T_1^0}}{\Delta t} \frac{\sqrt{4 + 2\beta + 3a}}{2\sqrt{3}(1 - \beta)} \left( \frac{2 + a}{1 + a} \right)^{3/2} \sqrt{\frac{\Gamma_p^\infty}{\mathcal{R}_0^\infty}} \\ \delta T_1^{\text{min}} &= 3 \frac{T_1^0 \sqrt{T_1^0}}{\Delta t} \Theta_{\text{cw}} \end{aligned} \quad (3.34)$$

Avec  $\Theta_{\text{cw}} = \frac{\sqrt{4 + 2\beta + 3a}}{2\sqrt{3}(1 - \beta)} \left( \frac{2 + a}{1 + a} \right)^{3/2} \sqrt{\frac{\Gamma_p^\infty}{\mathcal{R}_0^\infty}}$ .

On obtient donc la sensibilité  $\eta_{\text{cw}}$  :

$$\eta_{\text{cw}} = \delta S_{B_\perp}^{\text{min}} \sqrt{\Delta t} = \frac{\Theta_{\text{cw}}}{\gamma^2 \sqrt{T_1^0}} \quad (3.35)$$

On peut finalement estimer la valeur de  $\Theta_{\text{cw}}$  en prenant  $\beta = 0,68$  qui est la valeur trouvée expérimentalement. On trouve  $\Theta_{\text{cw}} \approx 30$  menant à une sensibilité  $\eta_{\text{cw}} \sim 1 \mu\text{T}^2 \text{MHz}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$ .

Maintenant que l'on a estimé la sensibilité de notre technique, on peut la comparer à la méthode communément utilisée pour rapidement détecter du bruit magnétique avec le centre NV. Cette technique est appelée "mesure à un  $\tau$  unique".

### 3.3.3 Comparaison avec la mesure à un $\tau$ unique

Comme la méthode de relaxométrie purement optique présentée dans cette partie, cette technique bien que non quantitative permet de détecter un bruit magnétique à la fréquence du centre NV rapidement. La mesure à un  $\tau$  unique utilise la même séquence d'impulsion que la mesure complète de  $T_1$  mais en ne faisant pas varier  $\tau$  qui reste fixe. Cette méthode est donc plus rapide. Lorsque le temps de relaxation varie, le signal obtenu pour un temps d'attente fixe varie de la même manière. On peut facilement voir des variations dans ce signal qui peuvent être induites par la présence d'un



champ magnétique fluctuant. Considérons les cas où  $T_1 = 1$  ms et  $T_1 = 1$   $\mu$ s (voir Figure 3.17). Pour un temps d'attente  $\tau = 1$   $\mu$ s, on voit bien sur la figure 3.17 que si le temps de relaxation  $T_1$  est grand, le signal obtenu est élevé tandis que si le temps  $T_1$  est court du fait de la présence d'un bruit magnétique, le signal obtenu est plus faible. Cette méthode est une alternative à celle présentée dans ce chapitre.

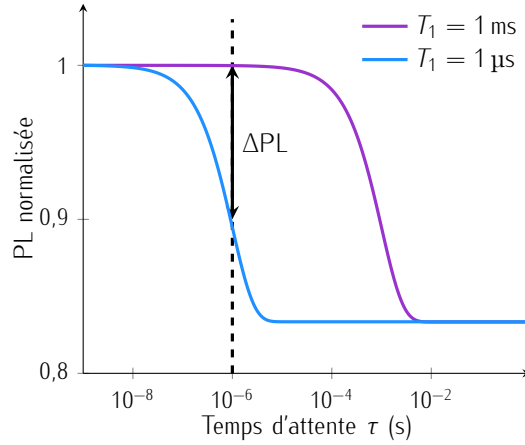


FIGURE 3.17 – Évolution du signal pour deux valeurs de temps de relaxation  $T_1 = 1$  ms (en violet) et  $T_1 = 1$   $\mu$ s (en bleu). Le trait en pointillé montre la différence dans le signal obtenu ( $\Delta$ PL) pour un temps d'attente  $\tau = 1$   $\mu$ s.

Afin d'estimer la sensibilité  $\eta_{\text{pulse}}$  de ce protocole de mesure, on va utiliser la même procédure que dans la [Sous-Partie 3.3.2](#). Tout d'abord, dans le cas d'une excitation laser pulsée, on peut écrire le taux de comptage  $\mathcal{R}_{\text{pulse}}$  en supposant que le temps de lecture  $T_L \ll \tau$  [221] :

$$\mathcal{R}_{\text{pulse}} \simeq \frac{\mathcal{R}_0 T_L}{\tau} \left( 1 + C_1 e^{-\frac{\tau}{T_1}} \right) \quad (3.36)$$

avec  $\mathcal{R}_0$  le taux de comptage de l'état  $m_s = 0$  défini dans la partie précédente (voir [équation 3.17](#)) et  $T_L$  le temps de lecture soit environ 300 ns. En s'intéressant aux limites, et en choisissant de se placer à  $\mathcal{P}_{\text{opt}} = \mathcal{P}_{\text{sat}}$  on peut finalement écrire :

$$\mathcal{R}_{\text{pulse}} = \frac{\mathcal{R}_0^\infty T_L}{2\tau} \left( \frac{1+2\beta}{3} \right) \left( 1 + \frac{2(1-\beta)}{1+2\beta} e^{-\frac{\tau}{T_1}} \right) \quad (3.37)$$

Le rapport signal sur bruit SNR est donc :

$$\text{SNR} = \frac{\left| \frac{\partial \mathcal{R}_{\text{pulse}}}{\partial T_1} \right| \delta T_1 \Delta t}{\sqrt{\mathcal{R}_{\text{pulse}} \Delta t}} \quad (3.38)$$

Par le même principe que précédemment, on a d'abord besoin de déterminer  $\frac{d\mathcal{R}_{\text{pulse}}}{dT_1}$  :

$$\frac{d\mathcal{R}_{\text{pulse}}}{dT_1} = \frac{\mathcal{R}_0^\infty T_L}{2\tau} \left( \frac{1+2\beta}{3} \right) \frac{2(1-\beta)}{1+2\beta} e^{-\frac{\tau}{T_1}} \frac{\tau}{T_1^2} \quad (3.39)$$

En remplaçant  $T_1 = T_1^0$  et  $\tau = \tau_{\text{opti}} = \frac{T_1^0}{2}$  qui sont les conditions maximisant le SNR puis en prenant  $\beta = 0,68$  on voit que  $2^{(1-\beta)}/\sqrt{e(1+2\beta)} = 0,165 \ll 1$  de sorte que :

$$\text{SNR} \simeq \frac{\delta T_1}{T_1^0 \sqrt{T_1^0}} \sqrt{\frac{(1-\beta)^2}{3(1+2\beta)e}} \sqrt{\Delta t T_L \mathcal{R}_0^\infty} \quad (3.40)$$

On peut par la suite calculer  $\delta T_1^{\text{min}}$  pour déterminer  $\delta S_{B_\perp}^{\text{min}}$  en résolvant l'équation  $\text{SNR} = 1$  :

$$\delta T_1^{\text{min}} = \frac{T_1^0 \sqrt{T_1^0}}{\sqrt{\Delta t T_L \mathcal{R}_0^\infty}} \sqrt{\frac{3(1+2\beta)e}{(1-\beta)^2}} \quad (3.41)$$

Finalement, comme pour le cas précédent, on détermine  $\eta_{\text{pulse}}$  en utilisant  $\delta T_1 = 3(T_1^0 \gamma)^2 \delta S_{B_\perp}(f_{\text{NV}})$  (voir [équation 3.12](#)) et on obtient :

$$\eta_{\text{pulse}} = \delta S_{B_\perp}^{\text{min}} \sqrt{\Delta t} = \frac{\Theta_{\text{pulse}}}{\gamma^2 \sqrt{T_1^0}} \quad (3.42)$$

avec  $\Theta_{\text{pulse}} = \sqrt{\frac{e(1+2\beta)}{3(1-\beta)^2 T_L \mathcal{R}_0^\infty}}$ .

On peut finalement estimer la valeur de  $\Theta_{\text{pulse}}$  en prenant  $\beta = 0,68$  et on obtient alors  $\Theta_{\text{pulse}} \approx 25$  menant à une sensibilité  $\eta_{\text{pulse}} \sim 1 \mu\text{T}^2 \text{MHz}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$ , similaire à celle obtenue avec la méthode tout optique.

Finalement, l'avantage principal de notre technique n'est pas tant sa sensibilité que sa simplicité d'utilisation. En effet, aucune séquence d'impulsion n'est nécessaire, aucune excitation micro-onde, uniquement la mesure de la photoluminescence est requise. De plus, contrairement à la méthode à un  $\tau$  unique qui nécessite une puissance laser optimale autour de la puissance de saturation soit plusieurs centaines de  $\mu\text{W}$ , cette nouvelle méthode nécessite des puissances optimales d'excitation beaucoup plus faibles (quelques  $\mu\text{W}$ ). Ceci est un avantage intéressant dans certaines applications en biologie pour l'étude de cellules pouvant absorber le faisceau d'excitation et chauffer [252, 256]. Par ailleurs, ces puissances optiques faibles permettent de limiter les conversions de charges du centre NV qui peuvent rendre le capteur quantique inutilisable [263]. Cependant, la limitation importante commune à ces deux mesures reste la plage de fréquence de détection du bruit. Seulement le bruit magnétique à la fréquence de résonance du centre NV induit une variation du temps de relaxation. On peut faire varier la position des fréquences de résonance en appliquant un champ magnétique  $\mathbf{B}$  aligné avec son axe de quantification mais il est difficile de dépasser quelques GHz.

Cette technique de relaxométrie a été développée dans le but d'étudier par exemple des matériaux antiferromagnétiques produisant un champ magnétique statique si faible que l'utilisation de la magnéto-métrie NV ne suffit pas. Pour ces matériaux, on va sonder les variations de bruit magnétique

induites par des ondes de spin activées thermiquement qui se trouvent dans ces matériaux selon qu'elles se trouvent confinées ou non dans les textures magnétiques [248]. Je vais alors dans la suite du chapitre tester cette méthode sur un matériau antiferromagnétique synthétique (SAF).

## 3.4 Application de cette méthode sur une couche antiferromagnétique synthétique

Dans cette partie, le protocole de mesure est implémenté dans un microscope NV à balayage (voir [Chapitre 1](#) et [l'Annexe A](#)) afin de cartographier le bruit magnétique. Ce nouveau mode d'imagerie est utilisé pour étudier un matériau antiferromagnétique synthétique. On commence par détecter les parois de domaine antiferromagnétiques, avant de vérifier par la mesure du temps de relaxation  $T_1$  du centre NV que le contraste observé provient bien de la présence d'un bruit magnétique. Enfin, l'origine de ce bruit magnétique dans les domaines et les parois de domaine est discutée grâce à des simulations théoriques de la dispersion des ondes de spin.

### 3.4.1 Détection des parois de domaine

On va maintenant appliquer la méthode présentée dans ce chapitre à l'imagerie magnétique. On va choisir, pour cela, une couche antiferromagnétique synthétique (SAF). Notre échantillon est composé d'un empilement de couches  $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ru}]_{\times 2}$  avec une symétrie d'inversion brisée (voir [Figure 3.18 \(a\)](#)). Il a été fabriqué par W. Legrand à *l'UMR CNRS / Thales* et est constitué de deux couches ferromagnétiques de cobalt couplées antiferromagnétiquement par l'interaction Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY) [264] et séparées par une couche non magnétique de ruthénium-platine optimisée. De plus, l'interface Pt-Co fournit une interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DMI) [265–267] combinée avec une importante anisotropie perpendiculaire pouvant être contrôlée par l'épaisseur des couches de cobalt [268]. Dans l'échantillon utilisé pour les expériences, on s'attend à observer de larges domaines antiferromagnétiques séparés par des parois de quelques dizaines de nm qui produisent un champ magnétique statique faible car les deux couches magnétiques sont entièrement compensées.

Pour réaliser des cartographies de bruit magnétique, il est nécessaire d'utiliser un microscope à force atomique (AFM) couplé à un microscope confocal. Dans ce dispositif, une pointe en diamant avec un centre NV unique implanté au bout d'un pilier (*QNAMI*) est utilisée dans l'AFM. La boucle d'asservissement permet de fixer la même distance entre l'échantillon et la pointe. Le

microscope confocal est, quant à lui, utilisé pour exciter le centre NV dans la pointe et collecter la photoluminescence (voir Figure 3.18 (a)).

On réalise une cartographie de la photoluminescence émise par le centre NV au-dessus d'une zone de l'échantillon de taille micrométrique. L'image obtenue est présentée sur la figure 3.18 (b). On y observe des lignes sombres au niveau des parois de domaine antiferromagnétiques. On va vérifier dans la partie suivante que le contraste observé au niveau des parois est bien lié à la présence de bruit magnétique.

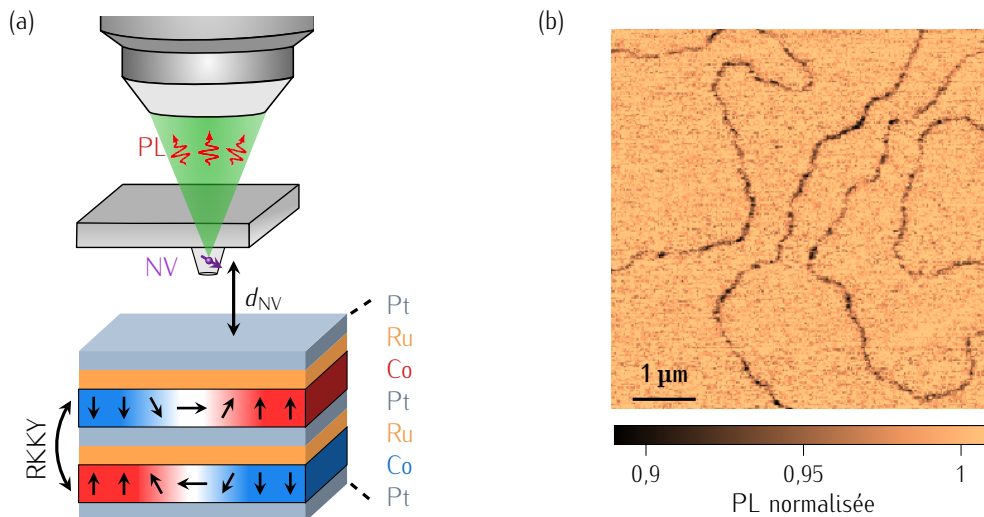


FIGURE 3.18 – (a) Schéma de la couche antiferromagnétique synthétique (SAF) composée d'un empilement  $[\text{Pt}/\text{Co}/\text{Ru}]_{\times 2}$  avec deux couches ferromagnétiques couplées antiferromagnétiquement par l'interaction RKKY. Schéma de la pointe en diamant contenant un centre NV séparé de la surface de l'échantillon d'une distance  $d_{NV}$  d'environ 80 nm caractérisée par la méthode décrite dans l'Annexe B. (b) Cartographie de la photoluminescence du centre NV montrant des lignes sombres correspondant aux parois de domaine antiferromagnétiques. Images adaptées de [269].

### 3.4.2 Étude quantitative des parois de domaine

Pour vérifier que le contraste observé est bien lié à du bruit magnétique, on va mesurer quantitativement  $T_1$  dans différentes zones de l'échantillon. On commence par le cas où la pointe se trouve loin de l'échantillon (rétractée) puis très proche du domaine (engagée sur le domaine) et enfin très proche de la paroi de domaine (engagée sur la paroi) (voir Figure 3.19 (a)-(c)). Le temps de relaxation  $T_1$  du centre NV dans la pointe est de 860  $\mu\text{s}$  ce qui est plus faible que les 7 ms dans le diamant massif. Ceci peut s'expliquer par le fait que le centre NV se trouve proche de la surface et donc les interactions avec des espèces paramagnétiques en surface diminuent  $T_1$  [221]. Quand la pointe est engagée sur le domaine, on mesure  $T_1 = 120 \mu\text{s}$  tandis que sur la paroi,  $T_1$  diminue jusqu'à 22  $\mu\text{s}$

(voir Figure 3.19 (d)). On a bien une source de bruit au niveau de l'échantillon et ce bruit semble plus intense au niveau des parois.

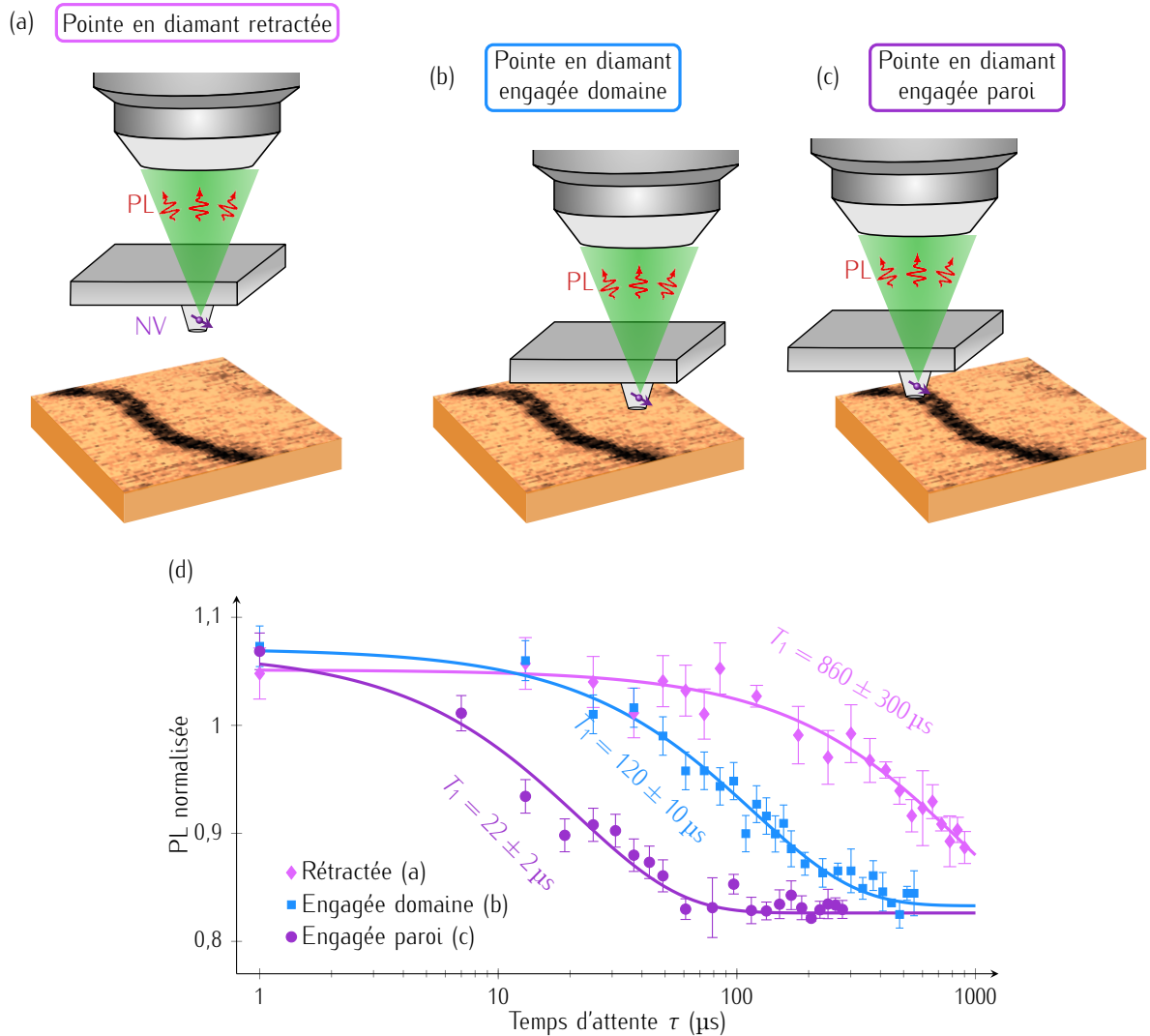


FIGURE 3.19 – (a) Schéma des différentes positions de la pointe et du centre NV lors de la mesure de  $T_1$ . La pointe est soit rétractée, soit engagée sur le domaine ou soit engagée sur la paroi de domaine. (b) Comparaison des temps de relaxation pour les différentes positions de la pointe montrées en (a). Images adaptées de [269].

### 3.4.3 Étude de la variation du contraste des parois de domaine

À ce stade, on peut confronter ces résultats expérimentaux avec le modèle à trois niveaux détaillé dans la Partie 3.1. En particulier, on va vérifier la dépendance en puissance laser du contraste entre les parois et les domaines. Pour cela, on a représenté sur la figure 3.20 (a), l'évolution de la photoluminescence en fonction de  $T_1$  pour deux puissances optiques différentes. Lorsque la puissance laser augmente, autrement dit lorsque  $\frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{(\mathcal{P}_{\text{opt}} + \mathcal{P}_{\text{sat}})}$  augmente, le contraste diminue. En effet, sur la

courbe rouge on a un contraste d'environ  $\mathcal{C} = 8,5\%$  tandis que sur la courbe bleue, le contraste est quasi nul (voir Figure 3.20 (a)). D'après le modèle, on s'attend donc, dans le cas présent, à voir une chute du contraste quand on augmente la puissance laser.

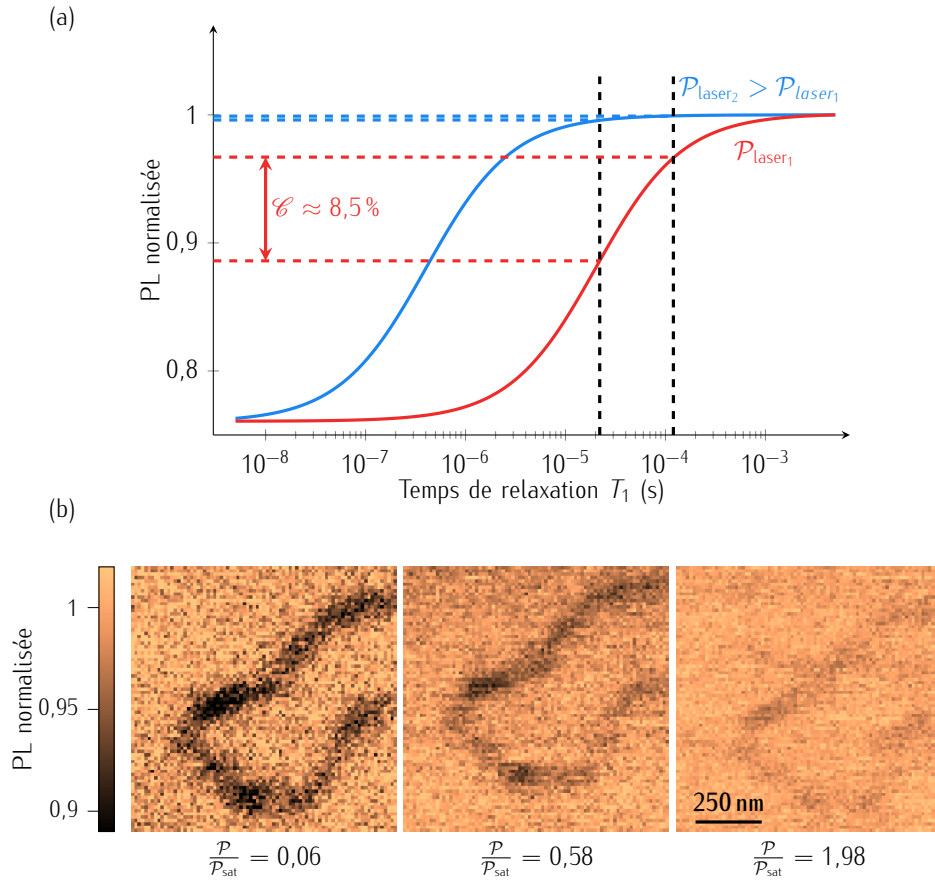


FIGURE 3.20 – (a) Évolution de la photoluminescence calculée par le modèle à trois niveaux pour deux puissances laser différentes ( $\frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{sat}}} = 1\%$  et  $\frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{sat}}} = 100\%$ ). La puissance de saturation du centre NV dans la pointe est  $\mathcal{P}_{\text{sat}} = 450 \mu\text{W}$ . (b) Cartes de la photoluminescence du centre NV pour différentes puissances laser au-dessus d'une paroi de domaine.

Pour vérifier cela, une paroi de domaine est sélectionnée et la cartographie de la variation de photoluminescence est réalisée pour différentes valeurs de puissances laser. On voit expérimentalement, comme prédit par le modèle, que la puissance laser a un effet sur le contraste de photoluminescence. Dans ce cas précis, comme attendu, lorsque la puissance laser augmente, le contraste diminue progressivement et disparaît quasiment pour un rapport de puissance de  $\frac{\mathcal{P}_{\text{opt}}}{\mathcal{P}_{\text{sat}}} = 198\%$  (Figure 3.20 (b)).

Pour optimiser le contraste optique, il est donc important d'ajuster la puissance laser d'excitation en fonction des valeurs de  $T_1$  obtenues dans les différentes zones.

### 3.4.4 Origine du bruit magnétique dans le matériau antiferromagnétique synthétique

Notre étude quantitative des parois de domaine a montré que la variation de photoluminescence est directement liée à une variation de bruit magnétique au niveau des parois de domaine. On peut donc se poser la question de l'origine de ce bruit magnétique non uniforme spatialement. On suppose qu'il est induit par des ondes de spin activées thermiquement mais pour le vérifier, J.-V. Kim et ses collaborateurs au *Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N)* ont simulé la relation de dispersion de ces ondes de spin. Pour cela, la couche à l'équilibre d'une paroi de domaine est d'abord calculée pour un échantillon composé de deux couches couplées antiferromagnétiquement. Ils ont ensuite calculé les relations de dispersion des ondes de spin dans un domaine (voir Figure 3.21 (b)) et dans une paroi de domaine (voir Figure 3.21 (c)). La relation de dispersion dans le domaine est

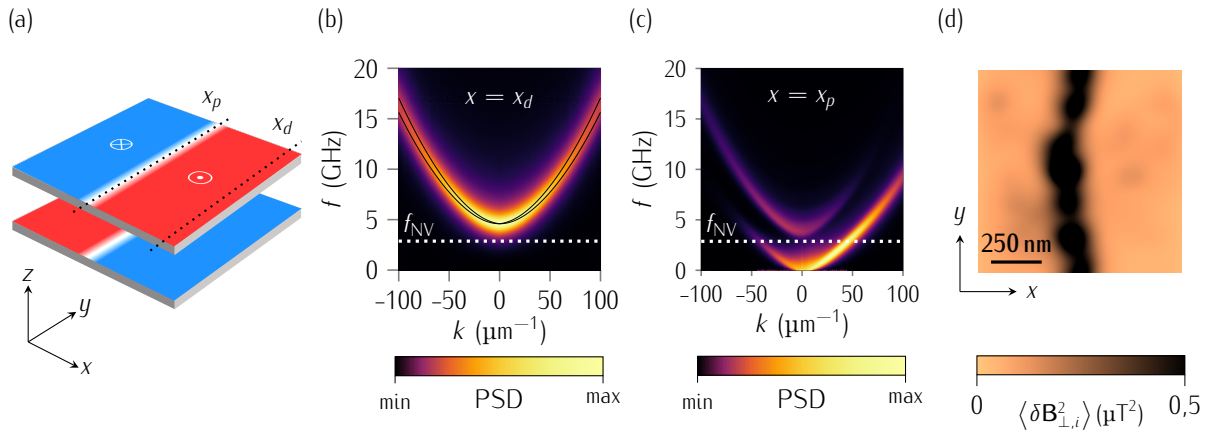


FIGURE 3.21 – (a) Schéma du modèle utilisé pour réaliser les calculs des relations de dispersion. (b)–(c) Relations de dispersion des ondes de spins dans un domaine et dans une paroi de domaine antiferromagnétique. Cette carte de couleur représente la densité spectrale de puissance (PSD). (d) Cartographie théorique de  $S_{B_{\perp}}$  calculée pour une distance  $d_{NV} = 80$  nm à la fréquence de résonance  $f_{NV} = 2,87$  GHz au-dessus d'une paroi de domaine. Images adaptées de [269].

présentée sur la figure 3.21 (b). Les deux lignes continues noires correspondent aux modes acoustique et optique qui ont subi une levée de dégénérescence en raison du couplage dipolaire entre les deux couches ferromagnétiques. Cette relation de dispersion est quadratique et possède un *gap* fixé par l'anisotropie magnétique perpendiculaire. En prenant en compte l'amortissement magnétique, les deux branches sont élargies. Par ailleurs, la fréquence de résonance du centre NV  $f_{NV}$  se trouve en dessous des deux lignes noires, c'est-à-dire dans le *gap*. On ne s'attend donc à aucune diminution du temps de relaxation lorsque la pointe est engagée sur le domaine. Cependant, en raison de l'élargissement par l'amortissement, la fréquence de résonance du centre NV se situe dans la queue

de la distribution de la densité spectrale de puissance. Cela explique la réduction de  $T_1$  observée en engageant la pointe sur le domaine. En ce qui concerne les parois de domaine, au milieu de la paroi, le champ de fuite compense l'anisotropie ce qui se traduit par la fermeture du *gap* dans la relation de dispersion des ondes de spin [270]. En conséquence, dans une paroi, à température ambiante, il existe toujours des modes peuplés thermiquement à la fréquence de résonance du centre NV. Le temps de relaxation  $T_1$  du centre NV est donc beaucoup plus sensible aux ondes de spin confinées dans les parois, ce qui est à l'origine des variations de photoluminescence.

Pour finir, une carte du bruit magnétique est simulée représentant l'évolution de la composante transverse de la densité spectrale de bruit à la fréquence de résonance du centre NV ( $f_{NV} = 2,87$  GHz) pour une distance  $d_{NV} = 80$  nm (correspondant à la situation expérimentale). L'amplitude du bruit magnétique auquel le centre NV est sensible est effectivement plus importante dans la paroi de domaine (voir Figure 3.21 (d)). La carte obtenue reproduit fidèlement les résultats expérimentaux.

Toutes ces mesures démontrent l'intérêt de ce protocole de mesure, ici appliqué à des matériaux produisant peu de champ de fuite et donc difficilement mesurables par un microscope à force magnétique (MFM) qui est la technique standard pour l'imagerie de films magnétiques à l'échelle nanométrique. Cette approche pourra être étendue à d'autres types de matériaux antiferromagnétiques, dans la mesure où la fermeture du *gap* est un phénomène général [271]. Par ailleurs, pour aller plus loin, on peut envisager de reconstituer expérimentalement la relation de dispersion des ondes de spin en faisant varier deux paramètres : la fréquence de résonance du centre NV  $f_{NV}$  et la distance  $d_{NV}$  (la distance du centre NV à la surface du matériau). En appliquant un champ magnétique externe, on peut en effet, décaler les fréquences de résonances du centre NV afin de faire varier la plage de fréquence sondée. De plus, le centre NV est principalement sensible aux ondes de spin de vecteur d'onde autour de  $|k| = \frac{1}{d_{NV}}$  [259] et donc en faisant varier la distance du centre NV à la surface de l'échantillon d'étude, on peut changer la valeur du vecteur d'onde  $k$  auquel on est sensible [272].

## Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai commencé par introduire un modèle simple pour le centre NV uniquement composé de trois niveaux d'énergie représentant l'état fondamental. Dans ce modèle, j'ai considéré deux phénomènes physiques en compétition qui sont le taux de polarisation  $\Gamma_p$  et le taux de relaxation  $\Gamma_1$  (directement lié au temps de relaxation  $T_1$ ) et j'en ai extrait l'évolution de la photoluminescence en fonction du temps de relaxation  $T_1$ . Ensuite, dans l'objectif de vérifier la validité ce modèle, avec la collaboration de T. Devolder au *Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N)*, on a mis en place une source de bruit magnétique calibré afin d'étudier de manière quantitative l'évolution de la photoluminescence du centre NV en fonction de  $T_1$ .



Par la suite, ce protocole de mesure tout optique a été comparé à la technique de mesure communément utilisée pour rapidement détecter le bruit magnétique, la mesure à un  $\tau$  unique. J'ai comparé les sensibilités théoriques estimées dans les conditions optimales pour les deux méthodes et obtenu  $\eta_{cw} \sim \eta_{pulse} \sim 1 \mu T^2 MHz^{-1} / \sqrt{Hz}$ . La technique de mesure décrite dans ce chapitre n'est donc pas plus performante mais son avantage est de fonctionner avec des puissances laser d'excitation bien plus faibles. Cela est un atout majeur dans l'étude de systèmes biologiques subissant un effet de chauffage par l'absorption du laser d'excitation [252, 256].

Pour finir, cette procédure de mesure a été appliquée dans le microscope NV à balayage à l'imagerie de textures antiferromagnétiques en localisant les sources de bruit magnétique uniquement par la mesure de la photoluminescence. Dans un matériau antiferromagnétique synthétique (SAF), il a été possible de détecter de cette façon des parois de domaine en raison de la sensibilité accrue du centre NV au bruit magnétique produit par les ondes de spin confinées dans les parois. Cette interprétation est soutenue par des calculs menés par nos collaborateurs du C2N, calculs des relations de dispersion des ondes de spin dans cet échantillon.

On pourra, par la suite, étendre cette approche à d'autres matériaux antiferromagnétiques qui produisent un champ magnétique statique très faible mais dans lesquels les parois hébergent également des modes de basses fréquences.

On peut aussi envisager d'étudier de cette façon, les fluctuations de spin à température ambiante des structures magnétiques dans les matériaux bidimensionnels de Van Der Waals possédant des températures de Curie basses. Enfin, grâce à la résolution spatiale nanométrique du microscope, on peut accéder aux caractéristiques des ondes de spin confinées dans des objets magnétiques, voire en faisant varier la distance  $d_{NV}$  et la fréquence  $f_{NV}$ , imaginer reconstruire la relation de dispersion des ondes de spin dans le matériau.

# LE CENTRE NV : UN CAPTEUR DE CHAMP ÉLECTRIQUE À L'ÉCHELLE NANOMÉTRIQUE

---

<b>4.1 Détermination du protocole de mesure du champ électrique</b>	<b>133</b>
4.1.1 Hamiltonien sous un champ électrique	134
4.1.2 Comportement de l'effet Stark sous un champ magnétique perpendiculaire	137
4.1.3 Mise en place des conditions expérimentales optimales	140
<b>4.2 Mesure du champ électrique avec le centre NV</b>	<b>144</b>
4.2.1 Description de l'échantillon	145
4.2.2 Mesure d'un champ électrique statique	146
4.2.3 Mesure du champ électrique en régime oscillant	150
<b>Conclusion</b>	<b>157</b>

Dans ce chapitre, je vais m'intéresser au développement du centre NV comme capteur de champ électrique. Le développement d'un capteur de champ électrique pouvant réaliser des mesures à température ambiante, capable de détecter des charges électriques uniques avec une bonne résolution spatiale tout en étant non perturbatif, peut offrir un large champ d'applications pluridisciplinaires. Ces applications vont des neurosciences avec l'étude de l'activité neuronale [273] aux propriétés des matériaux comme l'apparition de structures ferroélectriques hélicoïdales [274] voire même topologiques [275] qui sont analogues aux textures magnétiques non colinéaires [276, 277]. De plus, avoir un outil capable de détecter simultanément le champ électrique et le champ magnétique peut fournir une vision unique du couplage magnétoélectrique de certains matériaux tels que les multiferroïques [278–280] ou encore pour une compréhension de certains processus dans les domaines de la chimie et de la biologie [281–285].

Actuellement, plusieurs techniques permettent de mesurer des champs électriques. On peut citer, par exemple, celles reposant sur les ions piégés [286] ou les atomes de Rydberg [287, 288] mais il en existe d'autres fondées sur des résonateurs électromécaniques [289, 290] ou encore sur des transistors composés à électron unique [291–294]. Cette dernière technique a permis l'analyse de différentes propriétés comme, par exemple, la mesure des zones de déplétion, de la capacitance locale, de la courbure de bande ainsi que du potentiel de contact dans une interface semi-conducteur/semi-conducteur [291] ou encore de la densité de porteurs dans le graphène [293]. Cet outil de mesure offre une excellente sensibilité mais opère à des températures autour du mK, ce qui le rend difficile à mettre en place. À température ambiante, de nombreuses variantes de la microscopie à balayage sont utilisées : la microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) [295], la microscopie à force électrostatique (EFM) [296] ou encore la microscopie capacitive à balayage (SCM) [297] qui permettent par le biais d'une tension appliquée d'extraire des informations sur les distributions de potentiel ou de charges à la surface de l'échantillon mais aussi les profils de dopage et la concentration des porteurs dans les échantillons dopés de manière non-uniforme. Elles ont, par exemple, été appliquées à l'étude du silicium et son oxyde [297] pour détecter des variations dans les concentrations de dopage [295]. Une dernière technique à balayage que l'on peut citer est la microscopie à force piézoélectrique (PFM) qui détecte, à l'aide d'une pointe conductrice, les réponses électromécaniques de matériaux piézoélectriques afin de résoudre les variations de leurs propriétés piézoélectriques et ferroélectriques [298–301]. On peut ainsi cartographier des domaines ferroélectriques [298, 301] mais la mesure est perturbative et nécessite une électrode pour appliquer la différence de potentiel entre la pointe conductrice et l'échantillon. De plus, au-delà de propriétés ferroélectriques, certains matériaux hébergent également un ordre magnétique. Ce sont les matériaux multiferroïques [279, 280]. Il est alors souhaitable de disposer d'un capteur polyvalent non perturbatif, fonctionnant à température ambiante, de résolution spatiale nanométrique capable de détecter aussi bien les textures électriques que magnétiques.

Une solution est à nouveau d'utiliser le centre NV, cette fois comme capteur de champ électrique. Le couplage de ce défaut avec le champ électrique est plus faible que dans le cas du champ magnétique ce qui explique le moindre développement de l'électrométrie NV. C'est en 2011, qu'un centre unique a été utilisé pour la première fois pour mesurer un champ électrique avec des sensibilités DC et AC de  $891 \text{ V cm}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  et  $202 \text{ V cm}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  respectivement [28]. Cette sensibilité a été ensuite améliorée pour atteindre  $1 \text{ V cm}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  avec un ensemble de centres NV sous un champ électrique DC [302] et même  $0,1 \text{ V cm}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  pour un champ électrique AC [303]. Depuis lors, de nombreuses études ont montré le potentiel en tant que capteur de champ électrique [89, 304–308] et sa capacité à détecter un électron unique en 2014 [82]. Il a depuis été appliqué à l'étude de systèmes divers avec, par exemple, la caractérisation et la cartographie du champ électrique provenant d'une pointe de microscope à force atomique chargée [309, 310].

Notre objectif est de réaliser un électromètre à balayage en utilisant un centre NV dans une pointe en diamant montée dans un microscope à force atomique. Cette technique a fait ses preuves en magnétométrie, permettant l'étude de certains matériaux antiferromagnétiques [51–57] ou de matériaux bidimensionnels magnétiques [47–49]. La plupart des travaux sur l'électrométrie à centre NV ont fait usage de défauts dans le diamant massif et étendre à la microscopie à balayage reste, cependant, un défi en raison de plusieurs points limitants comme le faible couplage du spin électronique du centre NV avec le champ électrique [88], la réduction de son temps de cohérence dans des structures nanométriques [220] ainsi que les effets d'écrantage à la surface de l'échantillon ou de la pointe en diamant [311–313].

Dans ce chapitre, je vais dans un premier temps analyser l'effet d'un champ électrique sur le spin électronique du centre NV puis préciser les différentes conditions expérimentales nécessaires pour réaliser la mesure du champ électrique (voir [Partie 4.1](#)). Par la suite, je vais mesurer expérimentalement le champ électrique généré par un condensateur plan de taille micrométrique composé de deux lignes en or dans un microscope NV à balayage (voir [Partie 4.2](#)).

## 4.1 Détermination du protocole de mesure du champ électrique

Dans cette partie, je vais tout d'abord m'intéresser à l'effet du champ électrique sur le spin électronique du centre NV et ensuite, je vais analyser l'effet de l'orientation du champ magnétique additionnel. Enfin, je vais présenter la procédure pour se mettre dans les conditions expérimentales favorables pour la mesure du champ électrique.

### 4.1.1 Hamiltonien sous un champ électrique

Le champ électrique se couple avec le spin électronique du centre NV par effet Stark. Cet effet est analogue à l'effet Zeeman qui intervient lors du couplage avec un champ magnétique. Dans le [Chapitre 1](#), on a décrit simplement l'effet Stark dans le cas où le champ magnétique  $\mathbf{B}$  et le terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$  sont nuls. Cependant, afin de réaliser une mesure de champ électrique, il est nécessaire de caractériser précisément l'effet de ces deux paramètres dans un cas plus général. Pour cela, on reprend le Hamiltonien décrit par l'équation 1.5 dans le [Chapitre 1](#) qui ne prend pas en considération l'interaction hyperfine (interaction entre le spin électronique et le spin nucléaire de l'azote). Cet Hamiltonien peut s'écrire [28, 78, 82, 87] :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{h} = & DS_z^2 + \mathcal{E}(S_x^2 - S_y^2) + \gamma_{\text{NV}}(B_x S_x + B_y S_y + B_z S_z) \\ & + d_{\parallel} E_z S_z^2 - d_{\perp} \left[ E_x(S_x^2 - S_y^2) - E_y(S_x S_y + S_y S_x) \right] \end{aligned} \quad (4.1)$$

avec  $D$  et  $\mathcal{E}$  les termes de clivage axial et transverse,  $\gamma_{\text{NV}} = \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h} = 28 \text{ MHz mT}^{-1}$ ,  $B_x$ ,  $B_y$ ,  $B_z$  les trois composantes du champ magnétique,  $E_x$ ,  $E_y$ ,  $E_z$  les trois composantes du champ électrique dans le repère cartésien ainsi que les termes de couplage avec le champ électrique  $d_{\parallel} = 0,35 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  et  $d_{\perp} = 17 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  parallèle et perpendiculaire à l'axe de quantification du centre NV [88].

En comparant les termes de couplage parallèle  $d_{\parallel}$  et perpendiculaire  $d_{\perp}$ , on remarque que l'effet du champ perpendiculaire est plus important que celui du champ parallèle. La sensibilité à la composante perpendiculaire du champ électrique est environ cinquante fois plus importante que la sensibilité à la composante parallèle.

Par ailleurs, le terme de clivage transverse  $\mathcal{E}$  qui lève la dégénérescence entre les états  $m_s = -1$  et  $m_s = 1$  est simplement décrit par une seule de ces composantes mais en pratique il n'a aucune raison d'être isotrope. En effet, on peut alors réécrire  $\mathcal{H}$  en prenant en compte ses trois composantes  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_z$ . Le Hamiltonien décrit par l'équation 4.1 devient :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{h} = & DS_z^2 + \gamma_{\text{NV}}(B_x S_x + B_y S_y + B_z S_z) + (d_{\parallel} E_z + \mathcal{E}_z) S_z^2 - \\ & (d_{\perp} E_x + \mathcal{E}_x)(S_x^2 - S_y^2) + (d_{\perp} E_y + \mathcal{E}_y)(S_x S_y + S_y S_x) \end{aligned} \quad (4.2)$$

Cette formulation met en évidence que les termes de clivage  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_z$  ont les mêmes effets que les trois composantes du champ électrique  $E_x$ ,  $E_y$ ,  $E_z$  sur le spin électronique du centre NV [89]. On définit alors un champ électrique effectif  $E_{\text{eff}}$  qui contient  $\mathcal{E}$  et  $E$  soit  $E_{\text{eff}_k} = E_k + \frac{\mathcal{E}_k}{d_{\perp}}$  avec  $k \in \{x, y\}$  et  $E_{\text{eff}_z} = E_z + \frac{\mathcal{E}_z}{d_{\parallel}}$ . Le clivage transverse est une propriété intrinsèque du centre NV et peut facilement être calibré au préalable. **Pour cette raison et par souci de simplification dans**

la suite du chapitre, on écrira  $E_x$ ,  $E_y$  et  $E_z$  les trois composantes du champ électrique effectif correspondant à la somme du champ électrique  $E$  et du clivage transverse  $\mathcal{E}$ .

On peut alors réécrire le Hamiltonien dans la base  $|m_s = 0\rangle$ ,  $|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 1\rangle - |m_s = -1\rangle)$  et  $|-\rangle = \frac{-i}{\sqrt{2}}(|m_s = 1\rangle + |m_s = -1\rangle)$  comme [78] :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = \begin{pmatrix} 0 & i\gamma_{\text{NV}}B_y & -i\gamma_{\text{NV}}B_x \\ -i\gamma_{\text{NV}}B_y & D + d_{\parallel}E_{\text{NV}} + d_{\perp}E_x & -i\gamma_{\text{NV}}B_{\text{NV}} - d_{\perp}E_y \\ i\gamma_{\text{NV}}B_x & i\gamma_{\text{NV}}B_{\text{NV}} - d_{\perp}E_y & D + d_{\parallel}E_{\text{NV}} - d_{\perp}E_x \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

avec  $B_{\text{NV}} = B_z$  et  $E_{\text{NV}} = E_z$ .

Finalement, pour comprendre par la suite les influences des composantes parallèle et perpendiculaire du champ magnétique, on doit considérer les perturbations du second ordre des champs liées à la composante perpendiculaire du champ magnétique sur les énergies comme [78] :

$$\begin{cases} \frac{E_0}{h} = -\frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{2D} \\ \frac{E_{\pm}}{h} = D + \frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{2D} \pm \sqrt{\mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2} \left[ 1 - \frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{D\sqrt{\mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}} \sin\theta \cos\varphi + \frac{\mathcal{B}_{\perp}^4}{4D^2\sqrt{\mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}} \right]^{\frac{1}{2}} \end{cases} \quad (4.4)$$

avec  $\mathcal{B}_{\perp} = \gamma_{\text{NV}}B_{\perp}$ ,  $\mathcal{B}_{\text{NV}} = \gamma_{\text{NV}}B_{\text{NV}}$ ,  $D = D + d_{\parallel}E_{\text{NV}}$ ,  $\mathcal{E}_{\perp} = d_{\perp}E_{\perp}$ ,  $\tan\theta = \frac{\mathcal{E}_{\perp}}{\mathcal{B}_{\text{NV}}}$ ,  $\varphi = 2\varphi_B + \varphi_E$  avec  $\varphi_B$  et  $\varphi_E$  les angles dans le plan perpendiculaire à l'axe du centre NV du champ magnétique et du champ électrique effectif respectivement (voir Figure 4.1). On rappelle que  $B_{\perp} = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}$  et  $E_{\perp} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2}$ .

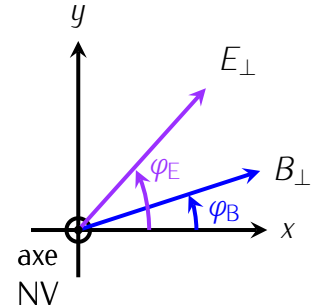


FIGURE 4.1 – Définition des angles  $\varphi_B$  et  $\varphi_E$ .

Par ailleurs, on peut supposer que  $D \gg d_{\parallel}E_{\text{NV}}$  ce qui est vérifié dans la plupart des cas. En effet,  $D \approx 3\text{GHz}$  et pour atteindre cette valeur avec le champ électrique, dans un condensateur plan de largeur  $2\mu\text{m}$ , il est nécessaire d'appliquer une tension de  $17 \times 10^5\text{V}$ . Dans le cadre de cette thèse, la tension maximale que l'on appliquera est de  $100\text{V}$ . Cette condition est donc validée. On peut alors réécrire les niveaux d'énergie  $E_{\pm}$  comme :

$$\frac{E_{\pm}}{h} = D + \frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{2D} \pm \left[ \mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2 - \frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{D} \cos(2\varphi_B + \varphi_E) \sqrt{\mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2} \times \sin(\arctan(\frac{\mathcal{E}_{\perp}}{\mathcal{B}_{\text{NV}}})) + \frac{\mathcal{B}_{\perp}^4}{4D^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.5)$$

Par la suite, on va se concentrer sur l'écart entre les niveaux d'énergie  $\Delta E = \frac{(E_+ - E_-)}{2}$  :

$$\frac{\Delta E}{h} = \left[ \mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2 - \frac{\mathcal{B}_{\perp}^2}{D} \cos(2\varphi_B + \varphi_E) \sqrt{\mathcal{B}_{\text{NV}}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2} \sin(\arctan(\frac{\mathcal{E}_{\perp}}{\mathcal{B}_{\text{NV}}})) + \frac{\mathcal{B}_{\perp}^4}{4D^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.6)$$

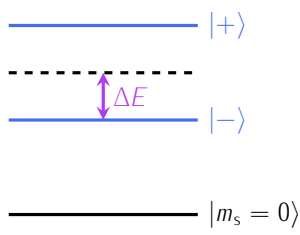


FIGURE 4.2 – Définition de  $\Delta E$ .

Lorsque les composantes du champ magnétique  $B_{NV}$  et  $B_{\perp}$  sont nulles, on remarque que l'écart entre les niveaux d'énergie  $\frac{\Delta E}{h} = \mathcal{E}_{\perp} = d_{\perp} E_{\perp}$ . Cet écart  $\Delta E$  varie linéairement avec la composante perpendiculaire du champ électrique effectif  $E_{\perp}$ . Il s'agit de la condition idéale pour mesurer le champ électrique avec le centre NV. Cependant, lorsque  $B_{NV} \neq 0$ , l'évolution de l'écartement entre les niveaux d'énergie  $\Delta E$  ne dépendra pas uniquement du champ électrique et pire encore, la contribution venant du champ magnétique masque l'effet de la contribution du champ électrique.

Même un champ magnétique faible comme le champ magnétique terrestre est une perturbation suffisante pour dégrader la mesure du champ électrique :  $B_{\text{terre}} \sim 50 \mu\text{T}$  ce qui correspond à un décalage de  $\frac{\Delta E}{h} \sim 1,4 \text{ MHz}$ . Une telle variation correspond à un champ électrique de  $8 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  autrement dit, même le champ magnétique terrestre ne peut pas être négligé.

Une solution à ce problème est d'appliquer un champ magnétique de biais purement perpendiculaire à l'axe du centre NV. Dans le cas où  $\frac{B_{\perp}^2}{2D} \gg \sqrt{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}$  on peut réécrire l'équation 4.6 comme :

$$\frac{\Delta E}{h} = \frac{B_{\perp}^2}{2D} \left[ \frac{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}{\frac{B_{\perp}^4}{4D^2}} - 2 \frac{\sqrt{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}}{\frac{B_{\perp}^2}{2D}} \cos(2\varphi_B + \varphi_E) \sin(\arctan(\frac{\mathcal{E}_{\perp}}{B_{NV}})) + 1 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.7)$$

Dans la condition précédente, le terme  $\frac{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}{\frac{B_{\perp}^4}{4D^2}}$  est négligeable. Ceci permet finalement de faire un développement limité afin d'obtenir :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta E}{h} &= \frac{B_{\perp}^2}{2D} \left[ -2 \frac{\sqrt{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}}{\frac{B_{\perp}^2}{2D}} \cos(2\varphi_B + \varphi_E) \sin(\arctan(\frac{\mathcal{E}_{\perp}}{B_{NV}})) + 1 \right]^{\frac{1}{2}} \\ &= -\cos(2\varphi_B + \varphi_E) \sqrt{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2} \sin(\arctan(\frac{\mathcal{E}_{\perp}}{B_{NV}})) + \frac{B_{\perp}^2}{2D} \end{aligned} \quad (4.8)$$

On remarque que l'application d'un champ magnétique perpendiculaire suffisant permet de diminuer considérablement les effets de la composante magnétique  $B_{NV}$ . Cependant, il est tout de même nécessaire d'avoir un champ  $B_{NV}$  assez petit pour se trouver dans la condition où  $\frac{\gamma_{NV} B_{NV}}{(d_{\perp} E_{\perp})} \ll 1$  sinon les variations des niveaux d'énergie ne seront pas linéaires avec le champ électrique. Si cette condition est réalisée alors on peut remplacer  $\sqrt{B_{NV}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}$  par  $\mathcal{E}_{\perp}$  tandis que  $\theta = \frac{\mathcal{E}_{\perp}}{B_{NV}} \gg 1$  de sorte que  $(\arctan \theta \rightarrow \frac{\pi}{2})$ . Cela permet d'obtenir :

$$\frac{\Delta E}{h} = \frac{B_{\perp}^2}{2D} - \cos(2\varphi_B + \varphi_E) \mathcal{E}_{\perp} \quad (4.9)$$

Finalement, dans ces conditions expérimentales,  $\Delta E$  varie de manière linéaire avec  $\mathcal{E}_{\perp} = d_{\perp} E_{\perp}$  mais dépend des angles  $\varphi_B$  et  $\varphi_E$  décrivant respectivement l'orientation des champs magnétique et électrique perpendiculaire.

Revenons aux positions des niveaux d'énergie afin d'en extraire les fréquences de résonance :

$$\begin{cases} \frac{E_0}{h} = -\frac{(\gamma_{NV}B_{\perp})^2}{2D} \\ \frac{E_{\pm}}{h} = (D + d_{\parallel}E_{NV}) + \frac{(\gamma_{NV}B_{\perp})^2}{2D}(1 \pm 1) \mp \cos(2\varphi_B + \varphi_E)d_{\perp}E_{\perp} \end{cases} \quad (4.10)$$

On peut alors écrire les fréquences de transition  $f_{\pm}$  comme  $\frac{E_{\pm} - E_0}{h}$  :

$$\begin{aligned} f_{\pm} &= (D + d_{\parallel}E_{NV}) + \frac{(\gamma_{NV}B_{\perp})^2}{2D}(2 \pm 1) \mp \cos(2\varphi_B + \varphi_E)d_{\perp}E_{\perp} \\ &= f_{\pm}(0) + d_{\parallel}E_{NV} \mp \cos(2\varphi_B + \varphi_E)d_{\perp}E_{\perp} \end{aligned} \quad (4.11)$$

avec  $f_{\pm}(0) = D + (2 \pm 1)\frac{(\gamma_{NV}B_{\perp})^2}{(2D)}$  les fréquences de résonance lorsque le champ électrique est totalement nul. On obtient finalement la variation de la fréquence de résonance uniquement induite par le champ électrique  $\Delta f_{\pm}$  [82] :

$$\Delta f_{\pm} = f_{\pm} - f_{\pm}(0) = d_{\parallel}E_{NV} \mp \cos(2\varphi_B + \varphi_E)d_{\perp}E_{\perp} \quad (4.12)$$

Ainsi, lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculaire à l'axe du centre NV, on s'affranchit des petites contributions provenant de  $B_{NV}$  qui deviennent alors une perturbation de second ordre dans la base  $|m_s = 0\rangle$ ,  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ . De plus, on note que les variations  $\Delta f_{\pm}$  dépendent fortement de l'orientation du champ magnétique appliqué décrit par l'angle  $\varphi_B$ . Dans le but d'optimiser la mesure du champ électrique on va, de ce pas, caractériser l'impact de l'orientation du champ magnétique sur ces variations  $\Delta f_{\pm}$  liées à l'effet Stark.

### 4.1.2 Comportement de l'effet Stark sous un champ magnétique perpendiculaire

Dans la suite, je vais m'intéresser à l'effet de l'orientation du champ magnétique sur le signal de mesure du champ électrique. Pour cela, on va considérer deux cas distincts : lorsque  $d_{\parallel}E_{NV} \ll d_{\perp}E_{\perp}$  et lorsque la contribution  $d_{\parallel}E_{NV}$  n'est plus négligeable.

#### Cas où $d_{\parallel}E_{NV} \ll d_{\perp}E_{\perp}$ :

Dans ce premier cas, on peut tracer l'évolution de  $\Delta f_{\pm}$  en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire définie par  $\varphi_B$ . On trouve alors pour  $\Delta f_{-}$  et  $\Delta f_{+}$ , une forme composée de deux lobes (voir Figure 4.3 (a)-(b)). Par ailleurs, sans champ électrique de biais il n'est pas possible de distinguer  $|-\rangle$  et  $|+\rangle$ , il est alors pertinent de s'intéresser à la grandeur  $|\Delta f_{\pm}|$ . Lorsque la condition  $d_{\parallel}E_{NV} \ll d_{\perp}E_{\perp}$  est respectée,  $|\Delta f_{-}| = |\Delta f_{+}|$  (voir Figure 4.3 (c)).



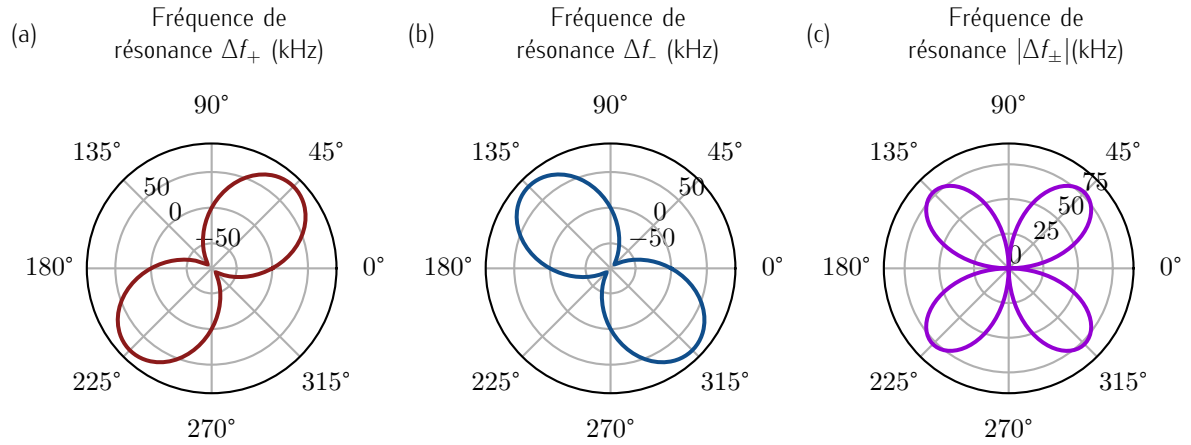


FIGURE 4.3 – (a)-(c) Évolution des fréquences de résonances  $\Delta f_+$ ,  $\Delta f_-$  et  $|\Delta f_{\pm}|$  (voir l'équation 4.12) en fonction de  $\varphi_B$ . Dans ce cas précis,  $B_z = B_{NV} = 0$  mT,  $B_{\perp} = 1$  mT avec un champ électrique effectif  $E_{\perp} = 0,45$  V  $\mu\text{m}^{-1}$  (pour  $\varphi_E = 90^\circ$ ) et  $E_{NV} = 0$  V  $\mu\text{m}^{-1}$ .

### Cas où $d_{\parallel}E_{NV}$ n'est plus négligeable :

Dans l'objectif de cartographier le champ électrique, on peut se pencher sur la possibilité certes très rare où la condition  $d_{\parallel}E_{NV} \ll d_{\perp}E_{\perp}$  n'est pas vérifiée et il devient intéressant d'étudier l'effet de la composante du champ électrique  $E_{NV}$ . Pour cela, on va considérer les trois cas suivants :

- (1) Cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \approx 5d_{\parallel}E_{NV}$
- (2) Cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \approx d_{\parallel}E_{NV}$
- (3) Cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \gg d_{\parallel}E_{NV}$

Dans le cas (1), la contribution de la composante parallèle du champ électrique  $E_{NV}$  n'est plus négligeable. Les grandeurs  $\Delta f_-$  et  $\Delta f_+$  possèdent toujours deux lobes et la seule différence concerne les valeurs minimum et maximum. En effet, la valeur minimum devient  $\Delta f_{\pm min} = d_{\parallel}E_{NV}$  tandis que la valeur maximum correspond à  $\Delta f_{\pm max} = d_{\parallel}E_{NV} + d_{\perp}E_{\perp}$  (voir Figure 4.4 (a)-(b)). En revanche, les grandeurs  $|\Delta f_-|$  et  $|\Delta f_+|$  ne sont plus équivalentes. Sur la figure 4.4 (c), on peut observer  $|\Delta f_+|$  tandis que  $|\Delta f_-|$  a exactement la même forme à une rotation  $90^\circ$  près.

Dans le cas (2), d'après l'équation 4.12, les valeurs minimales valent  $\Delta f_{\pm min} = 0$  et les valeurs maximales  $\Delta f_{\pm max} = d_{\parallel}E_{NV} + d_{\perp}E_{\perp}$ . Dans ce cas de figure, on a alors  $\Delta f_- = |\Delta f_-|$  et  $\Delta f_+ = |\Delta f_+|$  (voir Figure 4.4 (d)-(f)).

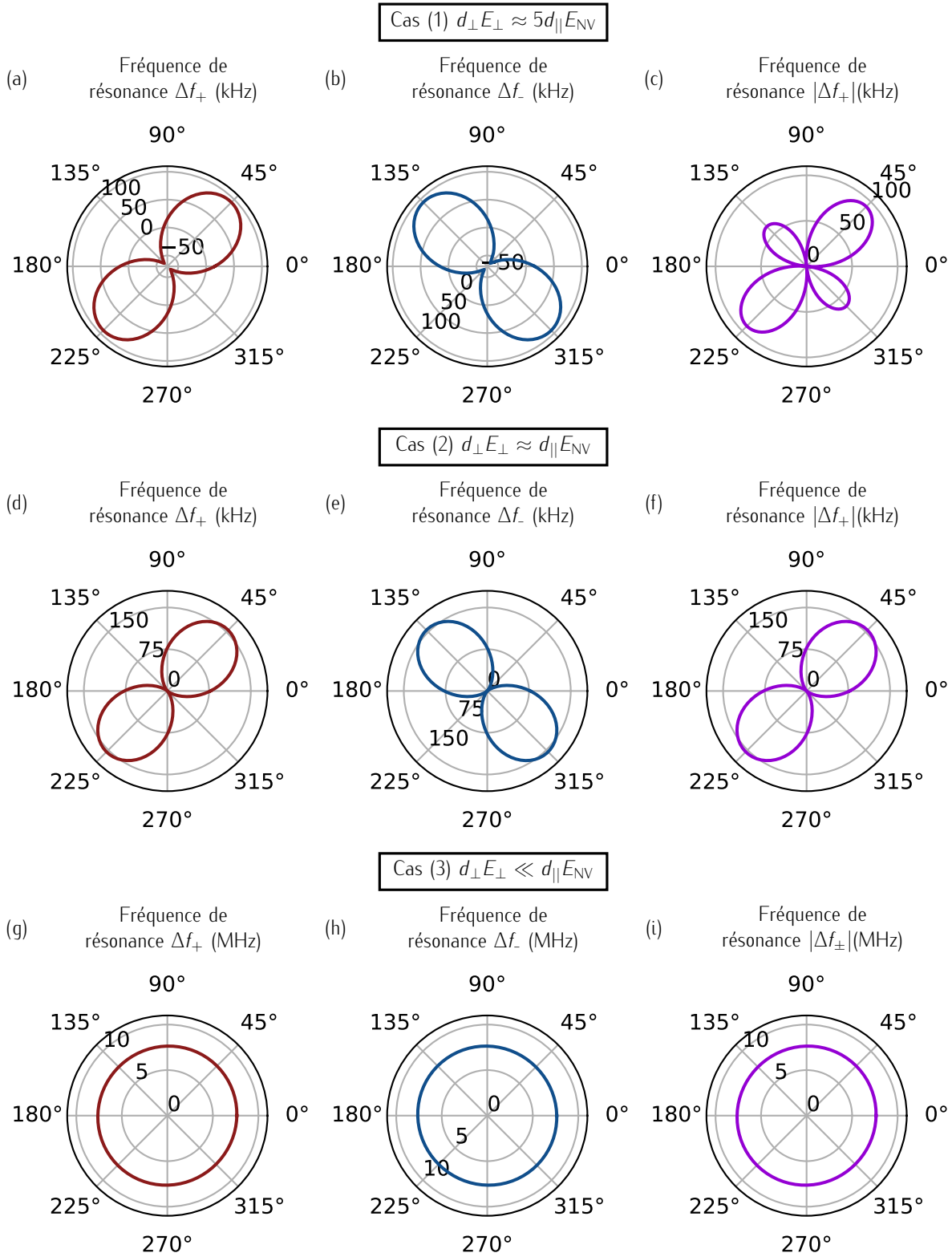


FIGURE 4.4 – Évolution des fréquences de résonances  $\Delta f_{+}$ ,  $\Delta f_{-}$  et  $|\Delta f_{+}|$  décrites dans l'équation 4.12 en fonction de  $\varphi_B$ . (a)-(c) Cas (1) où le champ électrique effectif  $E_{\perp} = 0,45 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  (pour  $\varphi_E = 90^\circ$ ) et  $E_{NV} = 4,4 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  correspondant au cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \approx 5d_{\parallel}E_{NV}$ . (d)-(f) Cas (2) où le champ électrique effectif  $E_{\perp} = 0,45 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  (pour  $\varphi_E = 90^\circ$ ) et  $E_{NV} = 22 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  correspondant au cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \approx d_{\parallel}E_{NV}$ . (g)-(i) Cas (3) où le champ électrique effectif  $E_{\perp} = 0,45 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  (pour  $\varphi_E = 90^\circ$ ) et  $E_{NV} = 2,2 \times 10^3 \text{ V } \mu\text{m}^{-1}$  correspondant au cas où  $d_{\perp}E_{\perp} \ll d_{\parallel}E_{NV}$ . Dans les trois cas, on considère les composantes du champ magnétique  $B_z = B_{NV} = 0 \text{ mT}$  et  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$ .

Dans le dernier cas (3), la composante du champ électrique parallèle à l'axe du centre NV est beaucoup plus importante que sa composante perpendiculaire. Le second terme de l'équation 4.12 est alors négligeable et ne dépend plus de l'orientation du champ magnétique appliqué et  $\Delta f_{\pm} = |\Delta f_{\pm}| = d_{||} E_{\text{NV}}$ .

Finalement, depuis le début du chapitre, on s'est attaché à évaluer l'effet du champ électrique sur le spin électronique du centre NV dans différentes conditions expérimentales. Tout cela montre que les conditions idéales pour mesurer le champ électrique correspondent à une configuration où le champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  est parfaitement nul. Dans ce cas, il n'est pas nécessaire d'appliquer un champ magnétique perpendiculaire de biais et les variations sur les raies de résonance  $\Delta f_{\pm}$  sont directement induites par le champ électrique. Cependant, cette configuration souffre du fait que la moindre fluctuation de champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  perturbe la mesure du champ électrique. Pour s'en affranchir, il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique perpendiculaire de biais. De plus, l'amplitude de ce champ magnétique est, certes, très importante mais l'orientation de ce champ l'est tout aussi. En effet, si, d'une part, l'amplitude du champ perpendiculaire n'est pas suffisante pour s'affranchir des fluctuations de  $B_{\text{NV}}$  alors le signal électrique mesuré n'est pas directement lié à l'effet Stark et, d'autre part, si l'orientation de ce champ correspond à un minimum, alors il n'est pas non plus possible de mesurer le champ électrique. Enfin, bien que l'application d'un champ magnétique perpendiculaire permet d'améliorer les conditions de mesure, il faut néanmoins que la condition  $d_{\perp} E_{\perp} \gg \gamma_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$  soit vérifiée auquel cas les variations  $\Delta f_{\pm}$  ne correspondent pas uniquement à la contribution du champ électrique.

### 4.1.3 Mise en place des conditions expérimentales optimales

La mise en place des conditions de mesure du champ électrique nécessite d'appliquer un champ magnétique de biais. Expérimentalement, l'application de ce champ magnétique de biais parfaitement perpendiculaire est une opération délicate. Pour commencer, il est primordial de connaître parfaitement les angles  $\theta_{\text{NV}}$  et  $\varphi_{\text{NV}}$  dans la pointe en diamant par rapport au référentiel du laboratoire ( $X, Y, Z$ ). Pour déterminer ces deux angles, on utilise la procédure de calibration décrite dans l'annexe D. Pour la pointe en diamant utilisée ici on a  $\varphi_{\text{NV}} = 98 \pm 2^{\circ}$  et  $\theta_{\text{NV}} = 61 \pm 1^{\circ}$ . Dans la suite du chapitre, le champ magnétique vectoriel décrit par les angles  $\varphi_B$  et  $\theta_B$  est appliqué à l'aide de six bobines de Helmholtz suivant les axes  $X, Y$  et  $Z$  du laboratoire.

La connaissance de ces angles  $\varphi_{\text{NV}}$  et  $\theta_{\text{NV}}$  permet de déterminer le plan perpendiculaire dans lequel on applique le champ magnétique  $B_{\perp}$ . Par ailleurs, le couplage du champ électrique avec le spin électronique du centre NV est trop faible pour espérer observer des variations liées au champ électrique par la mesure du spectre de résonance magnétique de manière continue (excitations laser et micro-onde continues) et donc **dans la suite du chapitre, tous les spectres de résonance**

magnétique sont enregistrés par des excitations laser et micro-onde impulsionnelles (méthode décrite dans le Chapitre 1).

La première étape est d'enregistrer le spectre de résonance magnétique de référence, pour un champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$  nul. Celui-ci comporte six raies de résonances (voir Figure 4.5). Comme expliqué dans le Chapitre 1, ces raies correspondent aux six transitions hyperfines de l'azote  $^{14}\text{N}$  qui compose le centre NV que l'on peut répartir en deux groupes de trois raies correspondant aux transitions entre les états  $m_s = 0$  et  $m_s = -1$  ainsi que les transitions entre  $m_s = 0$  et  $m_s = 1$ . Ces deux groupes sont représentés en bleu et en orange sur la figure 4.5. Ces trois raies de résonance sont séparées entre elles par l'interaction hyperfine  $\mathcal{A}_{zz}$  qui vaut pour le cas de l'azote  $^{14}\text{N}$ ,  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16 \text{ MHz}$  [91] (voir Figure 4.5). Le spectre de résonance magnétique en l'absence de champ magnétique appliqué indique la présence d'une composante  $B_{\text{NV}}$  résiduelle provenant du champ magnétique terrestre. En effet, la présence de six raies indique une contribution qui sépare les deux groupes de trois résonances. Par la suite, on notera  $\Delta\nu_3$ , l'écartement qui provient de la levée de dégénérescence des états  $m_s = \pm 1$  par effet Zeeman. Pour un champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp} = 0 \text{ mT}$ , on peut extraire  $\Delta\nu_3 \approx 0,9 \text{ MHz}$ , ce qui se traduit par un champ magnétique  $B_{\text{NV}} \approx 16 \mu\text{T}$ , l'amplitude de la composante du champ magnétique terrestre aligné à l'axe du centre NV. Cependant, on peut noter qu'il n'est pas possible par ce seul spectre de distinguer si les raies bleues correspondent à l'état  $m_s = -1$  ou  $m_s = 1$  et par conséquent de connaître si la composante alignée à l'axe du centre NV est positive ou négative. La caractérisation quantitative sera détaillée un peu plus tard. En ce qui concerne l'écart entre les raies centrales bleu et orange, il est plus important puisqu'il contient les contributions de  $\Delta\nu_3$  et  $\mathcal{E}$  que l'on va détailler plus en détail par la suite.

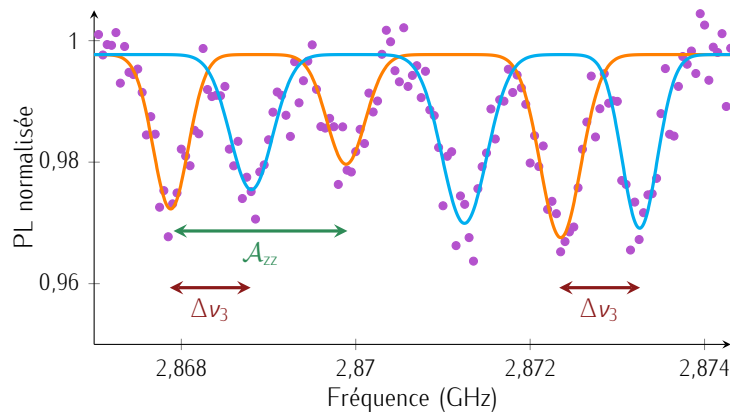


FIGURE 4.5 – Spectre de résonance magnétique sous excitation laser et micro-onde impulsionnelles pour un champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp} = 0 \text{ mT}$ . On ajuste le spectre par deux groupes de trois gaussiennes qui correspondent aux états  $m_s = \pm 1$ . On définit l'écartement entre ces deux groupes  $\Delta\nu_3$ . Les trois raies bleues ainsi que les trois raies oranges sont séparées par  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16 \text{ MHz}$  [91].

Pour décrire complètement les spectres mesurés, on reprend le Hamiltonien décrit par l'équation 4.2 en prenant en compte l'interaction hyperfine décrite dans le Chapitre 1 lorsque le champ magnétique  $\mathbf{B}$  est strictement nul :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{H}}{h} = & DS_z^2 + d_{\parallel} E_{NV} S_z^2 + d_{\perp} E_x (S_x^2 - S_y^2) - d_{\perp} E_y (S_x S_y + S_y S_x) \\ & + \mathcal{Q}_{nuc} I_z^2 + \gamma_{nuc} (B_x I_x + B_y I_y + B_z I_z) + \mathcal{A}_{zz} S_z I_z \end{aligned} \quad (4.13)$$

avec  $\gamma_{nuc} \approx 3,1 \text{ kHz mT}^{-1}$  le rapport gyromagnétique du spin nucléaire de l'azote  $^{14}\text{N}$  (contribution très faible et négligée par la suite),  $\mathcal{Q}_{nuc} \approx -4,95 \text{ MHz}$  [91] la constante quadripolaire électrique de l'azote  $^{14}\text{N}$ ,  $\mathcal{A}_{zz} \approx -2,16 \text{ MHz}$  [91] le terme d'interaction hyperfin de l'azote  $^{14}\text{N}$  ainsi que  $I_x$ ,  $I_y$  et  $I_z$  les opérateurs associés au spin nucléaire de l'azote.

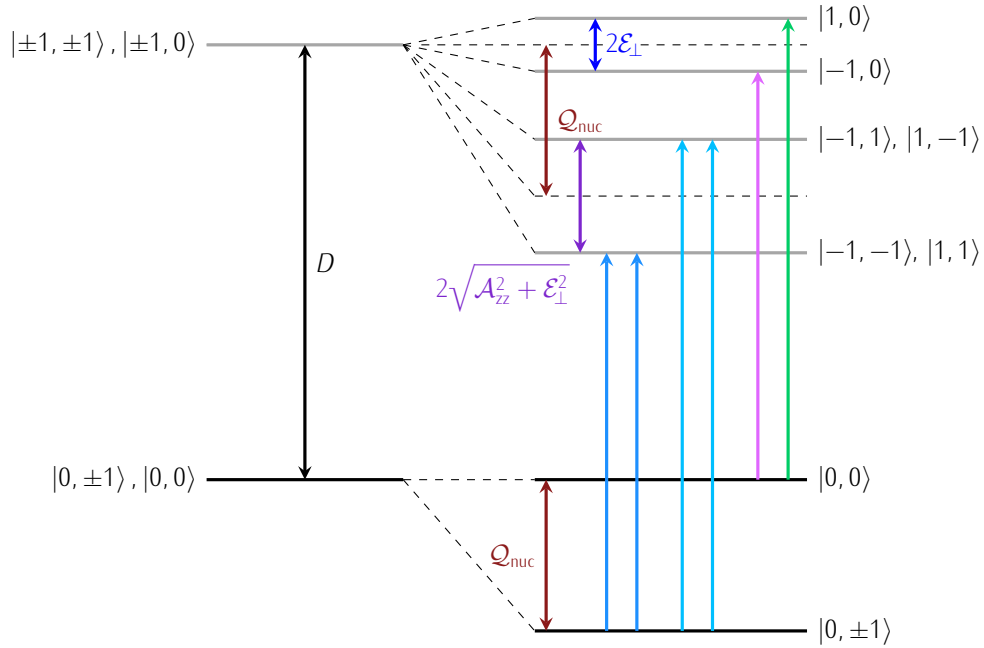


FIGURE 4.6 – Schéma des niveaux d'énergie lorsque l'on considère le couplage hyperfin du spin électronique du centre NV avec le spin nucléaire de l'azote  $^{14}\text{N}$  lorsque les champs magnétique et électrique sont nuls. On représente les niveaux d'énergie  $|m_s, m_l\rangle$ . On retrouve alors six transitions, dont deux non dégénérées ce qui correspond à quatre raies sur un spectre de résonance magnétique.

On rappelle que les paramètres  $E_x$ ,  $E_y$  et  $E_{NV}$  sont les composantes du champ électrique effectif qui prennent en compte les composantes du champ électrique ainsi que les composantes du terme de clivage transverse  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_z$ . Si on se place dans les conditions où les champs magnétique et électrique sont parfaitement nuls, on peut réécrire l'équation 4.13 comme :

$$\frac{\mathcal{H}}{h} = (D + \mathcal{E}_z) S_z^2 + \mathcal{E}_x (S_x^2 - S_y^2) - \mathcal{E}_y (S_x S_y + S_y S_x + \mathcal{Q}_{nuc} I_z^2 + \mathcal{A}_{zz} S_z I_z) \quad (4.14)$$

La composante  $\mathcal{E}_z$  du terme de clivage transverse a le même effet que le terme de clivage axial  $D$  tandis que sa composante  $\mathcal{E}_{\perp}$  (défini comme  $\mathcal{E}_{\perp} = \sqrt{\mathcal{E}_x^2 + \mathcal{E}_y^2}$ ) ne va pas se répercuter de la

même manière sur les niveaux d'énergies  $m_l = 0$  et  $m_l = \pm 1$ . En effet,  $\mathcal{E}_\perp$  va induire une levée de dégénérescence des états d'énergie  $m_l = 0$  et l'écart entre ces deux états varie linéairement avec  $\mathcal{E}_\perp$  (voir Figure 4.6). En revanche, en ce qui concerne les états d'énergie  $m_l = \pm 1$  déjà affectés par le terme d'interaction hyperfine  $\mathcal{A}_{zz}$ , l'effet de  $\mathcal{E}_\perp$  sur les niveaux d'énergie intervient sous la forme  $\sqrt{\mathcal{A}_{zz}^2 + \mathcal{E}_\perp^2}$  (voir Figure 4.6). Finalement, seulement quatre raies sont donc visibles sur le spectre de résonance magnétique lorsque la composante du champ  $B_{NV}$  est strictement nulle (voir Figure 4.6).

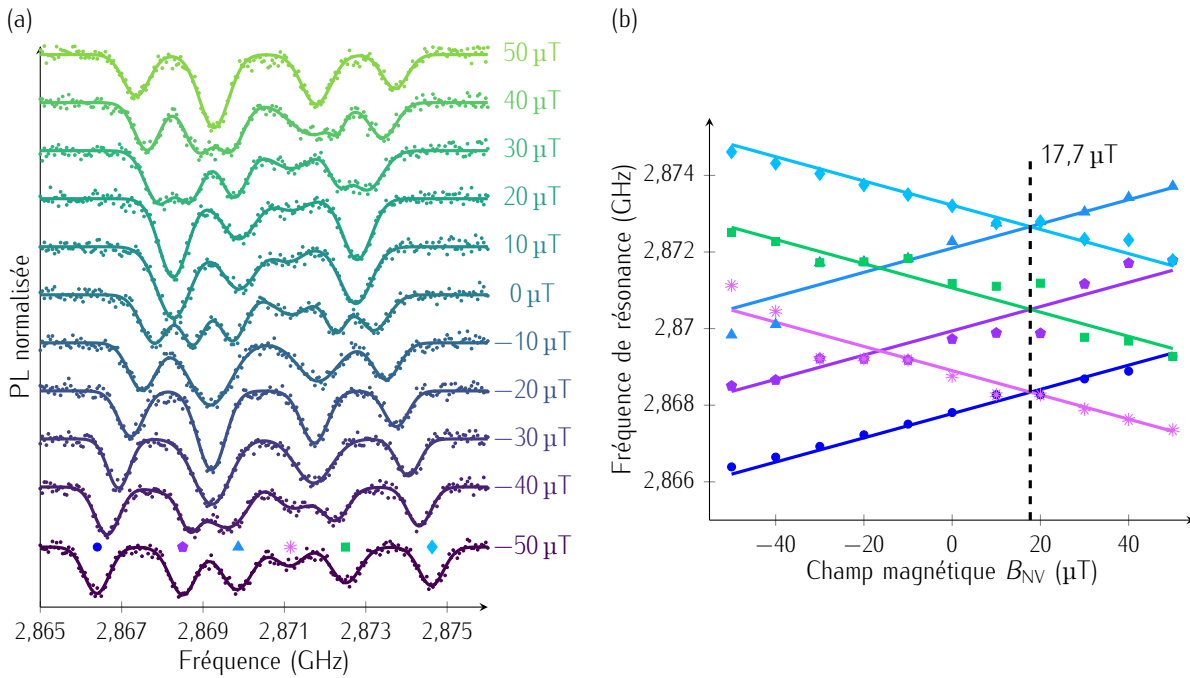


FIGURE 4.7 – (a) Série de spectres de résonance magnétique pour un champ magnétique aligné le long de l'axe de quantification du centre NV  $B_{NV}$  allant de  $B_{NV} = -50 \mu\text{T}$  à  $B_{NV} = 50 \mu\text{T}$ . (b) Évolution de la position des six raies de résonance en fonction du champ magnétique  $B_{NV}$ . L'ajustement linéaire permet de déterminer la contribution du champ magnétique terrestre sur l'axe de quantification du centre NV qui est de  $B_{\text{terre}}^{NV} = -17,7 \mu\text{T}$ .

On va maintenant mesurer de manière plus quantitative, puis compenser la composante du champ magnétique terrestre suivant l'axe du centre NV mise en évidence au travers de  $\Delta\nu_3$  dans la figure 4.5. Pour cela, en connaissant les angles  $\theta_{NV}$  et  $\varphi_{NV}$ , on peut appliquer un champ magnétique aligné le long de l'axe du centre NV allant de  $B_{NV} = -50 \mu\text{T}$  à  $B_{NV} = 50 \mu\text{T}$  et suivre la position des six raies sur les spectres de résonance magnétique. Ce suivi des six raies permet, par un ajustement par six fonctions linéaires de même pente au signe près et séparées d'une ordonnée à l'origine par la constante d'interaction hyperfine  $\mathcal{A}_{zz}$ , de déterminer la contribution du champ magnétique terrestre le long de l'axe du centre NV  $B_{\text{terre}}^{NV}$  (voir Figure 4.7). Sur cette figure 4.7, on extrait la valeur  $B_{\text{terre}}^{NV}$  lorsque les deux groupes de trois droites se croisent. C'est le point où le champ magnétique est complètement compensé. Il correspond à  $B_{NV} = 17,7 \mu\text{T}$ . Pour ce centre NV dans la pointe en

diamant, la contribution du champ magnétique terrestre sur l'axe de quantification du centre NV est de  $B_{\text{terre}}^{\text{NV}} = -17,7 \mu\text{T}$ .

Une fois la valeur de  $B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$  connue, on peut compenser la composante du champ magnétique terrestre. Sur le spectre de résonance magnétique en champ magnétique compensé, on retrouve comme attendu, quatre raies de résonance notées de 1 – 4 (voir Figure 4.8). On note  $\Delta\nu_1$  l'écart entre les raies de résonance 1 et 4 tandis que  $\Delta\nu_2$  désigne à l'écart entre les raies de résonance 2 et 3. Si on se réfère à la figure 4.6, l'écart  $\Delta\nu_1$  correspond aux deux transitions montrées par les flèches en bleu foncé et vaut  $\Delta\nu_1 = 2\sqrt{A_{zz}^2 + \mathcal{E}_{\perp}^2}$  tandis que l'écart  $\Delta\nu_2$  correspond aux deux transitions montrées par les flèches en bleu clair et vaut  $\Delta\nu_2 = 2\mathcal{E}_{\perp}$  (voir Figure 4.8).

Cette procédure est essentielle pour se placer dans les conditions idéales afin de mesurer un signal de champ électrique. Ces étapes (mesure de l'axe du centre NV dans le référentiel du laboratoire et compensation de  $B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$ ) sont reproduites pour chaque point en diamant avant chaque série de mesures.

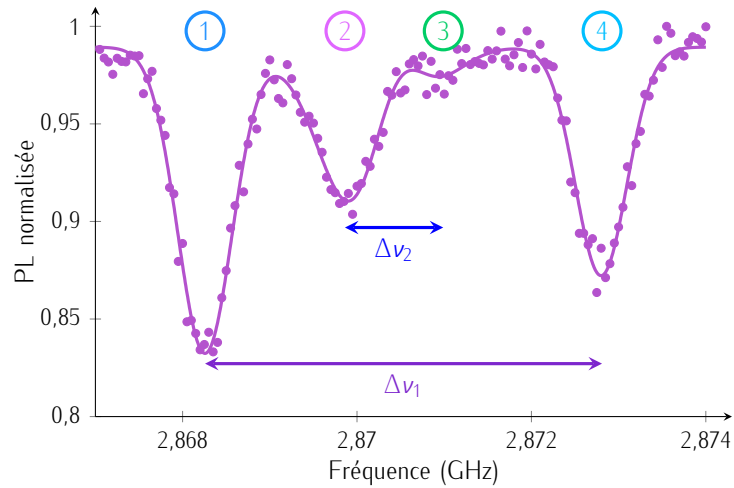


FIGURE 4.8 – Spectre de résonance magnétique lorsque le champ magnétique terrestre est compensé (soit  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$ ) et définition des écarts  $\Delta\nu_1$  et  $\Delta\nu_2$ . L'écart  $\Delta\nu_1$  correspond à l'écart entre les raies de résonance 1 (transitions  $|0, -1\rangle \rightarrow |-1, -1\rangle$  et  $|0, 1\rangle \rightarrow |1, 1\rangle$  montrées par les deux flèches en bleu foncé sur la figure 4.6) et 4 (transitions  $|0, -1\rangle \rightarrow |1, -1\rangle$  et  $|0, 1\rangle \rightarrow |-1, 1\rangle$  montrées par les deux flèches en bleu-clair sur la figure 4.6). L'écart  $\Delta\nu_2$  correspond à l'écart entre les raies de résonance 2 et 3 qui sont les deux raies séparées par le terme de clivage traverse  $\mathcal{E}_{\perp}$ .

## 4.2 Mesure du champ électrique avec le centre NV

Dans cette partie, je vais d'abord introduire l'échantillon utilisé pour générer un champ électrique. Par la suite, je vais réaliser la mesure d'un champ électrique statique et enfin, par un protocole d'écho de spin, étendre la mesure pour un champ oscillant pour améliorer la sensibilité.

### 4.2.1 Description de l'échantillon

Pour caractériser l'électromètre NV à balayage, il est nécessaire d'avoir un échantillon générant un champ électrique localisé. Pour cela, un échantillon composé de trois lignes d'or a été fabriqué par S. Fusil, à l'UMR CNRS / Thales. L'une de ces trois lignes d'or constitue l'antenne micro-onde permettant la mesure du spectre de résonance magnétique. Les deux autres lignes ne sont connectées que d'un côté afin d'appliquer une différence de potentiel et ainsi induire un champ électrique entre les deux lignes. La séparation entre les deux lignes vaut  $2,2\ \mu\text{m}$ , ce qui permet d'obtenir un champ électrique d'environ  $45\ \text{V}\ \mu\text{m}^{-1}$  pour une tension de  $100\ \text{V}$  si on suppose que l'on se trouve dans un condensateur plan (voir Figure 4.9 (a)). La pointe en diamant est alors directement positionnée entre les deux lignes d'or afin de mesurer ce champ électrique (voir Figure 4.9 (b)).

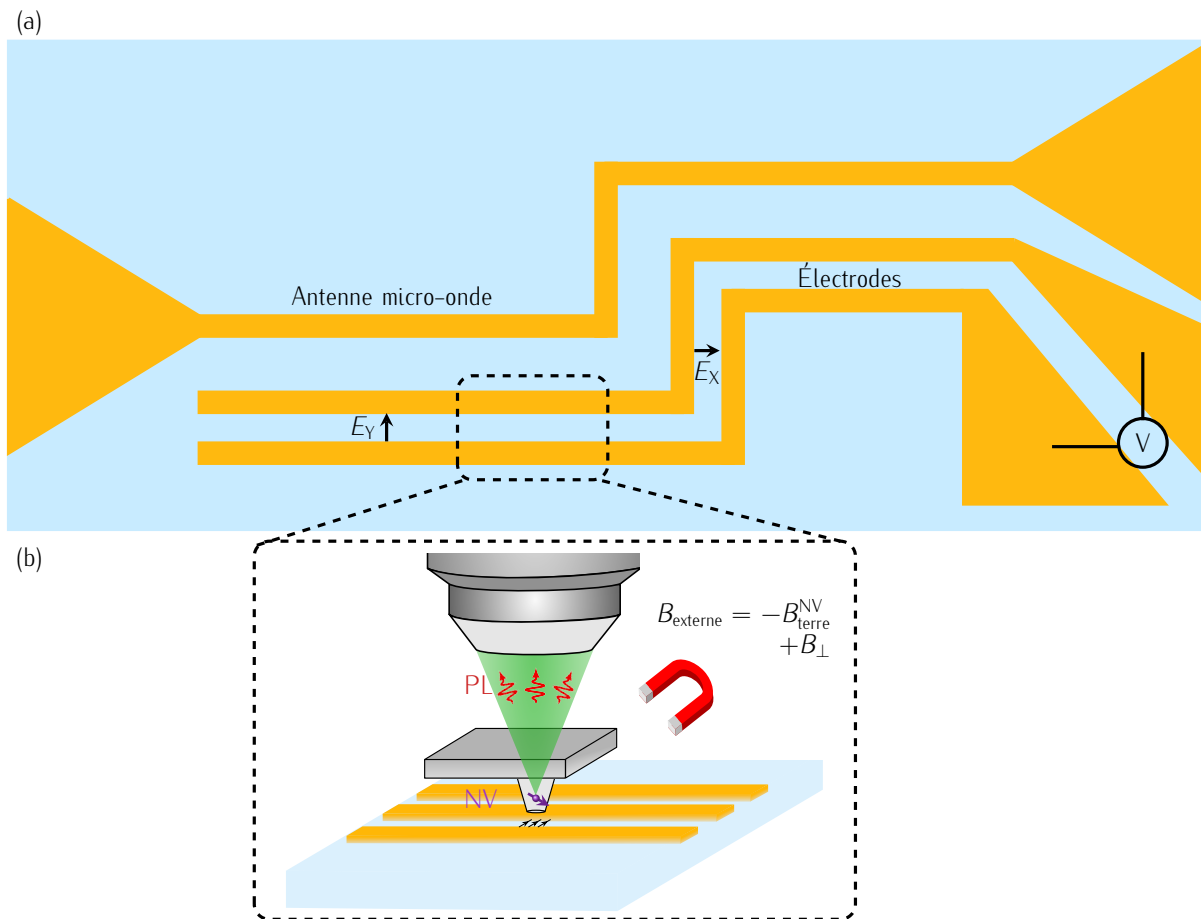


FIGURE 4.9 – (a) Schéma de l'échantillon composé de trois lignes en or. La première est connectée des deux côtés et correspond à l'antenne micro-onde afin de réaliser les spectres de résonance magnétique. Les deux autres sont séparées de  $2,2\ \mu\text{m}$  et ne sont connectées que d'un côté afin d'appliquer une différence de potentiel pour ainsi générer un champ électrique. (b) Schéma des conditions expérimentales de mesure avec la pointe en diamant contenant un centre NV unique directement positionnée entre les deux lignes générant le champ électrique.



Par ailleurs, on a vu dans la [Partie 4.1](#) que le spin électronique du centre NV est bien plus sensible (environ cinquante fois) à la composante perpendiculaire du champ électrique qu'à la composante parallèle à l'axe de quantification du centre NV. Afin d'optimiser la configuration de test, les lignes en or sont disposées en forme de S (voir [Figure 4.9](#) (a)). Cela permet de choisir l'orientation la plus favorable du champ électrique suivant l'angle  $\varphi_{\text{NV}}$  dans la pointe qui peut être soit proche de  $0^\circ$  (suivant  $x$ ) ou de  $90^\circ$  (suivant  $y$ ).

## 4.2.2 Mesure d'un champ électrique statique

On commence par appliquer une tension continue, ce qui a pour conséquence de générer un champ électrique statique entre les deux lignes d'or. L'effet Stark induit par ce champ électrique va modifier les écarts  $\Delta\nu_1$  et  $\Delta\nu_2$  (voir [Figure 4.8](#)) qu'on va mesurer par la variation des positions des deux raies de résonance 1 et 2.

La première expérience consiste à réaliser une rampe de tension afin de caractériser l'évolution du champ électrique avec la tension appliquée. Pour cela, on fait varier la tension de 0 V à 100 V et on mesure le spectre de résonance magnétique autour des deux raies de résonance de basses fréquences 1 et 2 en se plaçant à  $B_\perp = 0$  mT et  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$  (voir [Figure 4.10](#)). D'abord, on remarque que les raies 1 et 2 ne se déplacent pas de façon claire et monotone lorsqu'on applique une rampe de tension allant de 0 V à 100 V (voir [Figure 4.10](#) (a),(c)-(d)) ou inversement de 90 V à 0 V (voir [Figure 4.10](#) (b),(e)-(f)). On s'attend à observer une dépendance linéaire du décalage des raies en fonction de la tension mais ce n'est pas le cas. Les variations de position observées ici sont probablement liées à des champs électriques parasites dans le microscope lorsque l'on modifie la tension sur le générateur.

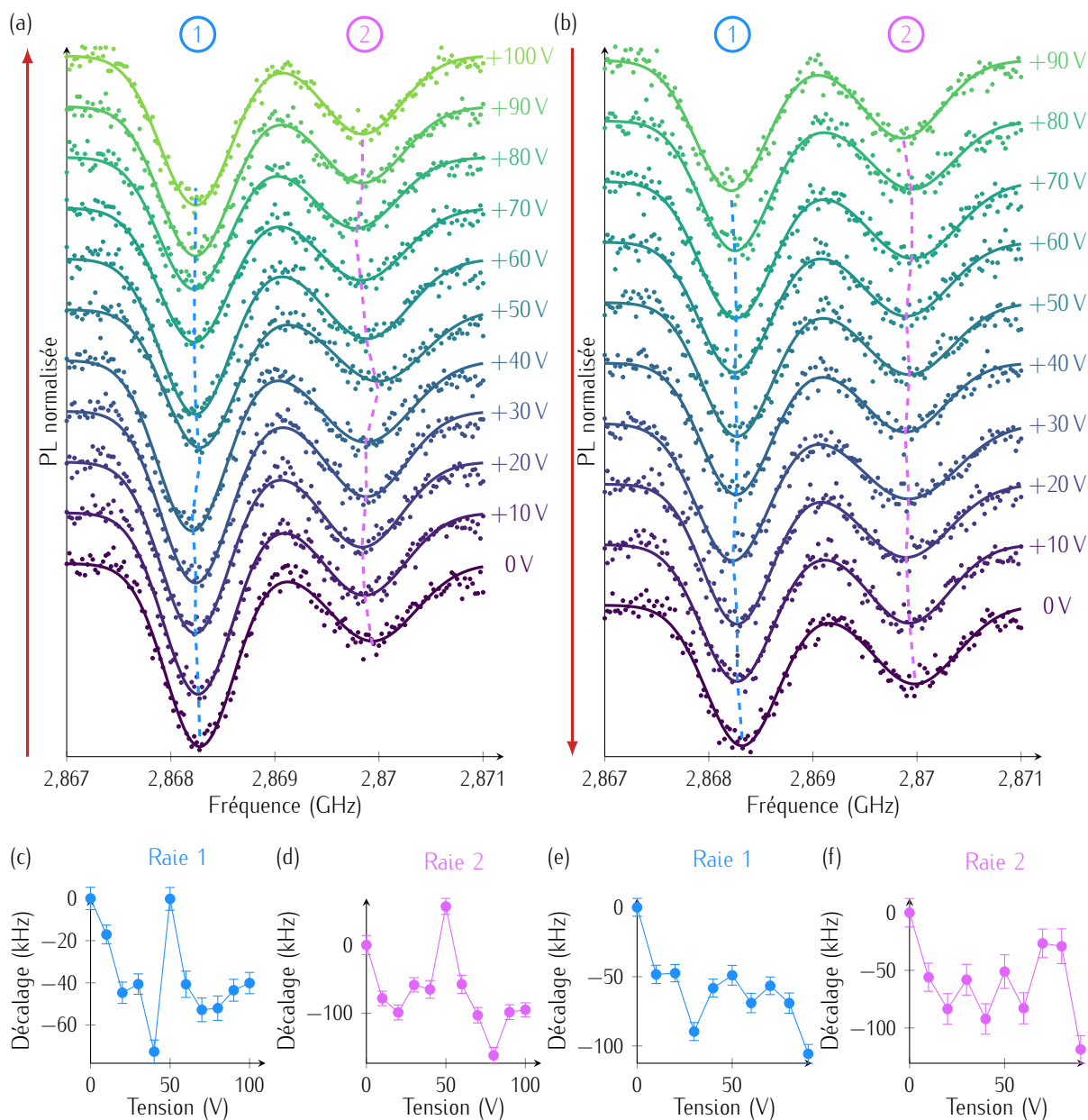


FIGURE 4.10 – (a)-(b) Séries de spectres de résonance magnétique pour des tensions allant de 0 V à 100 V et de 90 V à 0 V respectivement sous un champ magnétique  $B_{\perp} = 0$  mT et  $B_{NV} = -B_{\text{terre}}^{NV}$ . (c)-(d) Évolution de la variation de la position des raies de résonance 1 et 2 respectivement dans la série de mesure (a). (e)-(f) Évolution de la variation de la position des raies de résonance 1 et 2 respectivement dans la série de mesure (b).

Bien que l'apparition de champs électriques parasites dans le microscope soit un problème, on peut fixer la tension à 100 V et tenter de faire une mesure de l'effet Stark en fonction de la direction du champ magnétique perpendiculaire. En effet, dans la partie précédente (voir [Sous-Partie 4.1.1](#)), on a vu que l'effet Stark dépend de la direction du champ magnétique perpendiculaire appliqué. Dans le but de confirmer que les décalages de raies sont bien dus à un effet Stark provenant de l'échantillon, on mesure le signal en fonction de la direction du champ magnétique perpendiculaire c'est-à-dire

de l'angle  $\varphi_B$ . Dans ce cas, on se place dans les conditions où  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$  et  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$  et les écarts  $\Delta\nu_1$  et  $\Delta\nu_2$  sont alors mesurés pour des angles  $\varphi_B$  allant de  $-60^\circ$  à  $60^\circ$  (voir Figure 4.11 (a)–(b)). La mesure réalisée pour une tension de 100 V est ensuite comparée à une mesure identique pour une tension de 0 V (voir Figure 4.11). Ces résultats semblent montrer que l'on détecte bien un effet Stark provenant de l'échantillon.

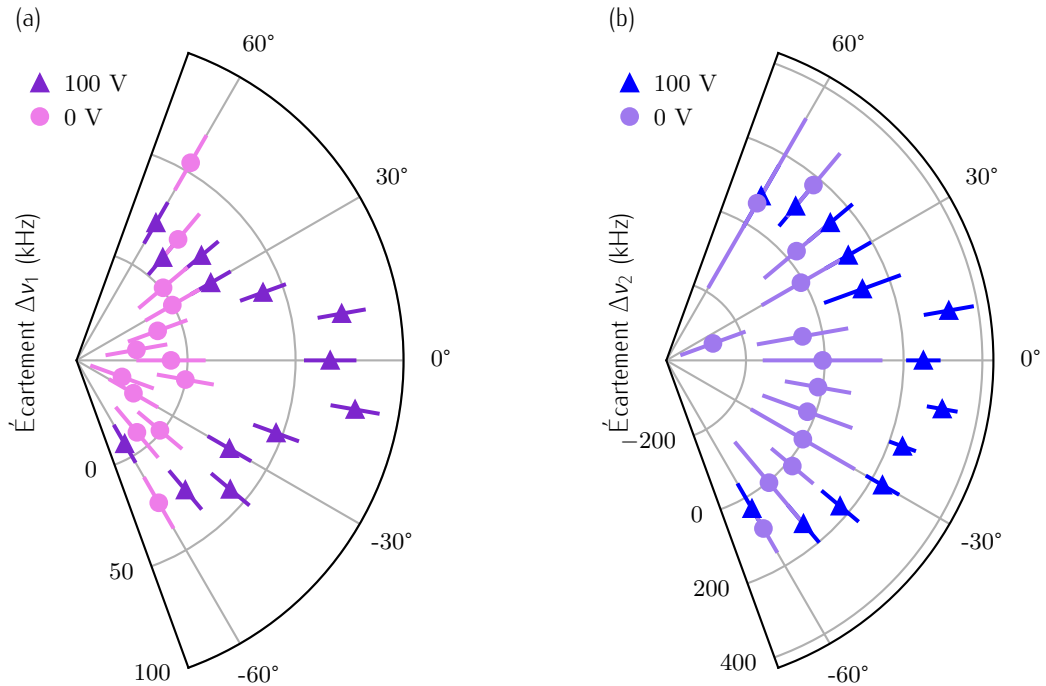


FIGURE 4.11 – (a) Évolution de l'écartement  $\Delta\nu_1$  entre les raies de résonance 1 et 4 en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$  pour une tension de 0 V (cercles roses) et 100 V (triangles violets). (b) Évolution de l'écartement  $\Delta\nu_2$  entre les raies de résonance 2 et 3 en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$  pour une tension de 0 V (cercles violets) et 100 V (triangles bleus). Dans les deux mesures, la norme du champ magnétique perpendiculaire est fixée à  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$  et la composante du champ magnétique terrestre suivant l'axe du centre NV est compensée soit  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$ .

Pour essayer de comprendre la provenance des champs électriques parasites, une série de tests est réalisée. Plusieurs sources possibles ont été identifiées :

- Le générateur lui-même, suivant qu'il soit en position 0 V ou complètement éteint.
- Les positionneurs piézoélectriques servant à déplacer l'échantillon sur des distances de l'ordre de quelques centaines de micromètres.
- Les scanners piézoélectriques servant à déplacer l'échantillon à l'échelle nanométrique.

### Effet du générateur :

On commence par tester le générateur. On mesure alternativement  $\Delta\nu_1$  sur le spectre de résonance magnétique pour une tension de 0V puis 100V. Pour la mesure à 0V, la source du générateur de tension est d'abord complètement éteinte (voir Figure 4.12 (a)), puis cette dernière est allumée mais configurée pour ne délivrer aucune tension (voir Figure 4.12 (b)). On observe des variations de  $\Delta\nu_1$  qui ne correspondent pas aux variations de la tension mais sans voir non plus de corrélation entre l'écartement mesuré et l'état du générateur. Cela semble indiquer que le champ électrique mesuré par le centre NV provient de charges résiduelles quelque part dans le microscope ou l'échantillon.

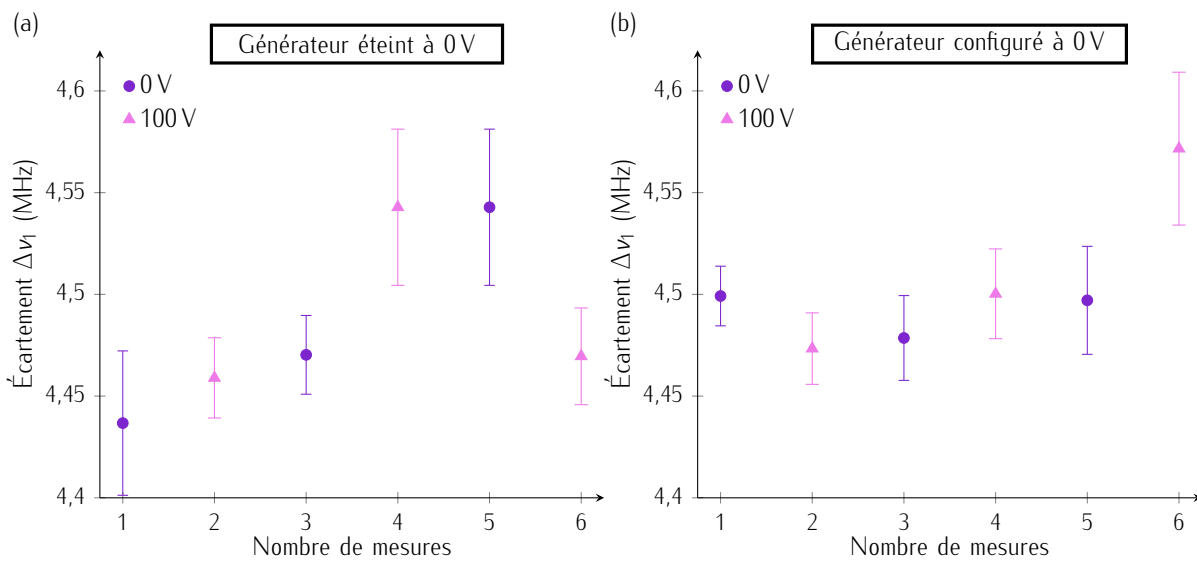


FIGURE 4.12 – Évolution de  $\Delta\nu_1$  en alternant la tension entre 0V et 100V. (a) Lors de la mesure à 0V le générateur de tension est complètement éteint. (b) Lors de la mesure à 0V le générateur de tension est allumé et programmé pour délivrer 0V. Dans ces mesures, la norme du champ magnétique perpendiculaire est fixée à  $B_{\perp} = 1$  mT et la composante du champ magnétique terrestre suivant l'axe du centre NV est compensée soit  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$ .

### Effet des scanners et positionneurs :

Dans un second temps, les effets des scanners et des positionneurs piezoélectriques sont testés. Pour cela, on mesure la variation de la position des quatre raies de résonance 1 à 4 lorsque l'on déplace uniquement l'échantillon suivant  $Y$  en utilisant le scanner (voir Figure 4.13 (a)-(d)) puis en utilisant le positionneur (voir Figure 4.13 (e)-(h)) pour une tension appliquée à l'échantillon de 0V. On remarque dans les deux cas une variation significative de la position des raies avec un caractère non reproductible indiquant un comportement d'hystérésis. Ces résultats indiquent que tout déplacement de l'échantillon est susceptible de rendre la mesure non fiable.

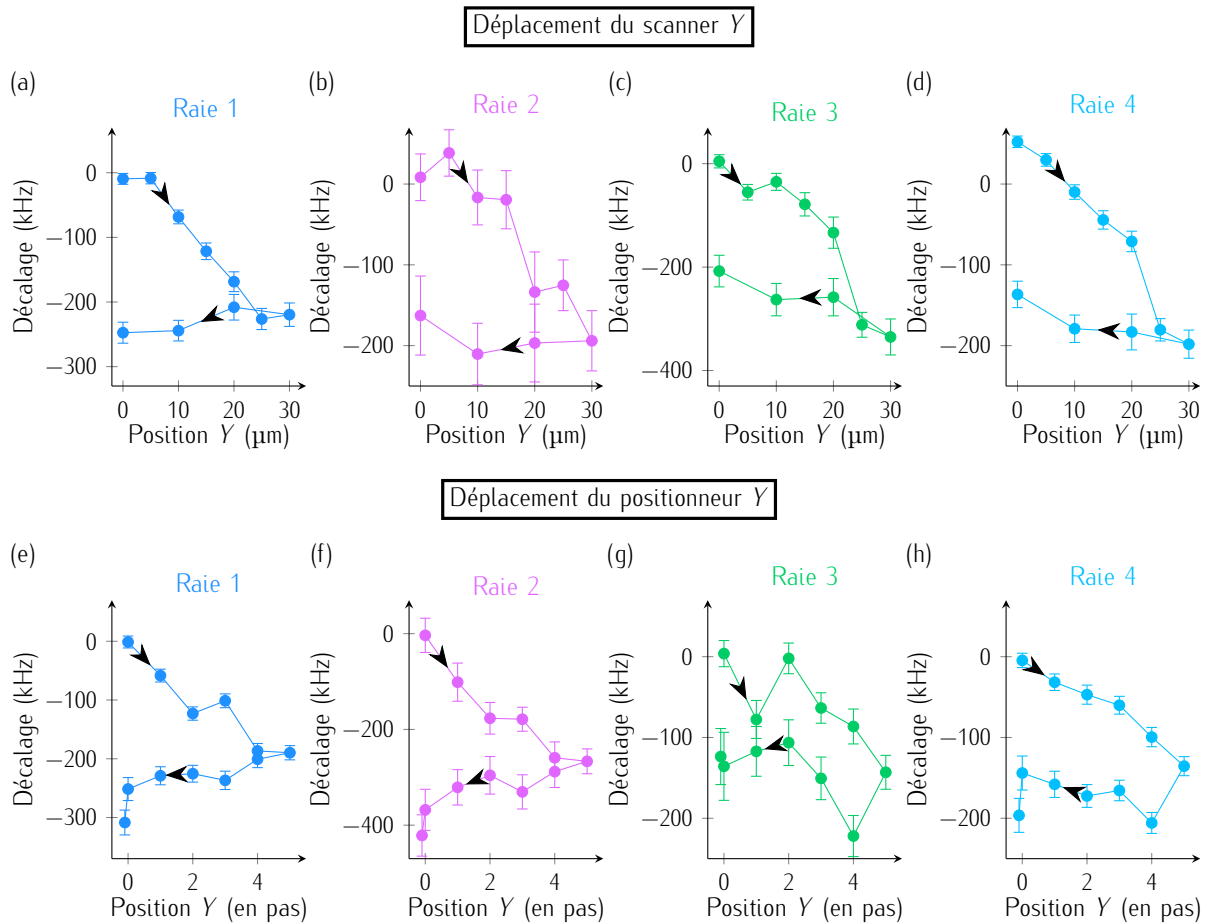


FIGURE 4.13 – Évolution de la variation de la position des quatre raies de résonance 1 à 4 lorsque l'on déplace l'échantillon avec le scanner Y (a)-(d) puis ensuite le positionneur Y (e)-(h). Dans ces mesures, la norme du champ magnétique perpendiculaire est fixée à  $B_{\perp} = 1$  mT et la composante du champ magnétique terrestre suivant l'axe du centre NV est compensée soit  $B_{NV} = -B_{\text{terre}}^{NV}$ .

Chaque action induit des champs électriques parasites dans le microscope et on se rend compte qu'il ne va pas être possible de mesurer l'effet Stark de cette manière. Pour s'affranchir de ces champs électriques statiques, la meilleure solution est de mesurer un signal oscillant uniquement sur la fréquence d'intérêt. On va de plus utiliser un protocole de découplage dynamique pour améliorer la sensibilité de la mesure.

### 4.2.3 Mesure du champ électrique en régime oscillant

On a vu, dans la partie précédente, les limites de la mesure de l'effet Stark en enregistrant des spectres sous des excitations laser et micro-onde impulsionnelles. On va donc changer de méthode et mesurer non plus la variation des niveaux d'énergie dans le spectre de résonance magnétique mais la variation de la phase acquise par le système en présence du champ électrique. La séquence

correspond à un protocole "écho de spin". Dans ce protocole, on retrouve deux impulsions laser qui servent à initialiser le défaut dans l'état de spin  $|m_s = 0\rangle$  puis à lire l'état de spin après la séquence. Après la première impulsion laser, une impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  permet de faire passer le système dans la superposition quantique  $\frac{(|m_s = 0\rangle + |m_s = 1\rangle)}{\sqrt{2}}$ . Le système évolue alors durant un temps fixe  $\frac{\tau}{2}$  où le champ électrique va induire une variation de la phase. Ensuite, une impulsion micro-onde de durée  $T_{\pi}$  est appliquée afin de renverser le spin. Dans la seconde partie de la séquence, l'amplitude du champ électrique oscillant est inversée. Durant ce même temps  $\frac{\tau}{2}$ , on va donc acquérir une deuxième fois une variation de la phase induite par le champ électrique tandis

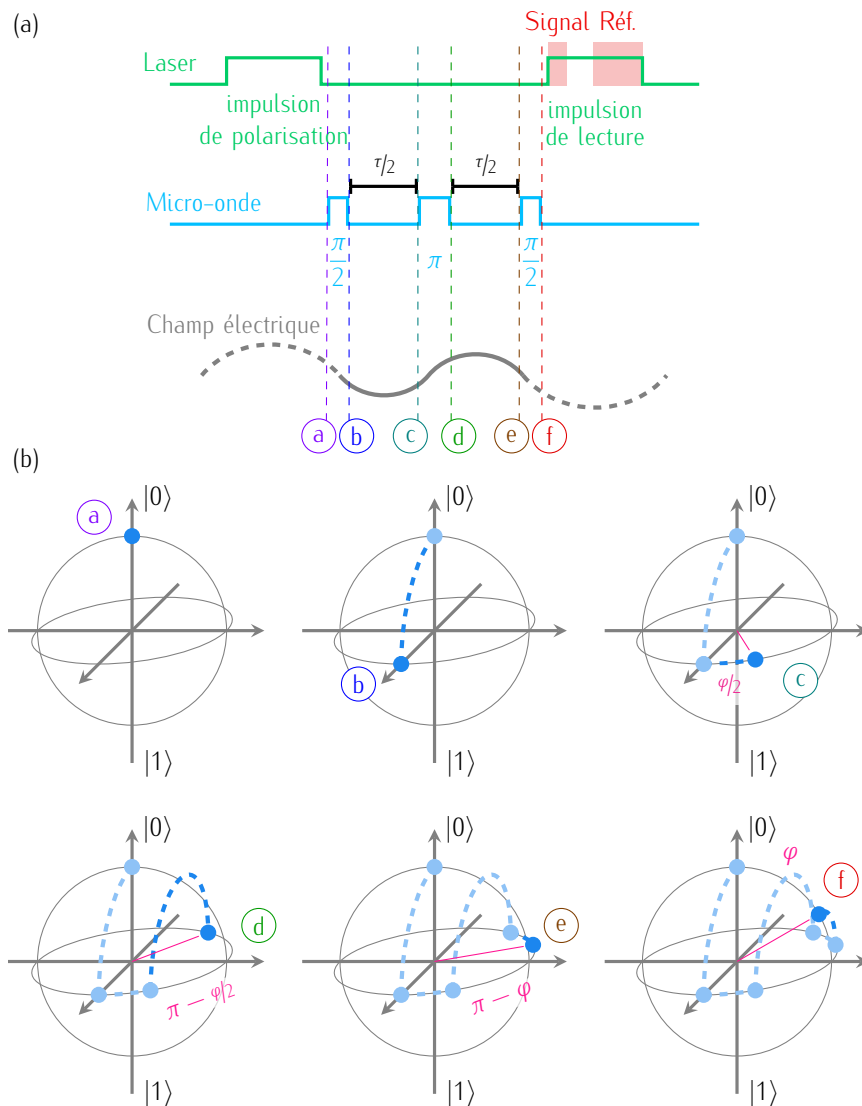


FIGURE 4.14 – (a) Séquence de découplage dynamique permettant la mesure du champ électrique oscillant. La durée entre les impulsions micro-onde  $T_{\pi}$  et  $T_{\frac{\pi}{2}}$  est fixée ici à  $3\mu\text{s}$  tandis que la fréquence du champ électrique oscillant est déterminée et adaptée en fonction de l'impulsion micro-onde  $\pi$  mesurée sur l'oscillation de Rabi. (b) Évolution de l'état quantique sur la sphère de Bloch aux différents moments clés sur la séquence (a).

que l'on va s'affranchir de toutes les fluctuations lentes dont la contribution va s'annuler avec celle du début de la séquence. Enfin, une seconde impulsion micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  va remettre le spin sur l'axe des populations ce qui, avec la deuxième impulsion laser, permet de lire l'état de spin et par conséquent mesurer la phase (voir [Figure 4.14](#) (a)-(b)). L'évolution du signal obtenu varie sous la forme de la fonction  $\mathcal{F} = \cos^2\left(\frac{\varphi_{\text{Stark}}}{2}\right)$  avec  $\varphi_{\text{Stark}}$  la phase accumulée par l'effet du champ électrique durant la séquence. Ce protocole de mesure nécessite de synchroniser les impulsions laser et micro-onde avec le champ électrique oscillant.

Lors de la mesure du champ électrique oscillant, la séquence de mesure précédente est suivie d'une seconde séquence identique pendant laquelle le champ électrique oscillant est éteint afin d'obtenir un signal de photoluminescence de référence sans champ électrique  $\mathcal{S}_{\text{ref}}$ . Cette référence est utilisée pour normaliser le signal  $\mathcal{S}_{\text{E}}$  obtenu avec le champ électrique oscillant. Les données présentées par la suite correspondent à  $\mathcal{S} = \frac{\mathcal{S}_{\text{ref}} - \mathcal{S}_{\text{E}}}{\mathcal{S}_{\text{ref}}}$  de façon à avoir  $\mathcal{S} = 0$  en champ électrique nul.

La dernière étape pour pouvoir réaliser ces mesures réside dans le choix de la fréquence du champ électrique oscillant  $f_{\text{E}}$  ainsi que dans les valeurs de  $\frac{\tau}{2}$  entre les impulsions micro-onde de durées  $T_{\pi}$  et  $T_{\frac{\pi}{2}}$ . En effet, la durée totale de la séquence ne doit pas dépasser la valeur du temps de cohérence  $T_2$ . En effet, pour détecter le signal du champ électrique oscillant, il est indispensable que le système soit dans une superposition quantique d'état mais si le temps de la séquence est plus important que le temps de cohérence  $T_2$  alors il ne sera plus possible de détecter le signal du champ électrique. Il est alors nécessaire de caractériser à l'aide de la séquence décrite dans le [Chapitre 1](#) ce temps caractéristique du centre NV dans la pointe en diamant utilisée pour les mesures du champ électrique. Pour la pointe utilisée ici, le temps de cohérence vaut  $T_2 \approx 20 \mu\text{s}$ . Pour satisfaire la condition de mesure, on a fixé la durée  $\frac{\tau}{2}$  à  $3 \mu\text{s}$  et la fréquence de l'oscillation du champ électrique est calculée en fonction de la durée de l'impulsion micro-onde  $T_{\pi}$  obtenue afin de synchroniser correctement le champ électrique et les impulsions micro-onde. Généralement la durée de l'impulsion micro-onde  $T_{\pi}$  est d'environ  $T_{\pi} \approx 2 \mu\text{s}$  et la durée  $T_{\frac{\pi}{2}} \approx 1 \mu\text{s}$ , ce qui résulte une fréquence de l'oscillation du champ électrique  $f_{\text{E}} = \frac{1}{T_{\pi} + \tau} \approx 125 \text{ kHz}$ .

La [figure 4.15](#) montre l'évolution du signal  $\mathcal{S}$  obtenu lorsque l'on augmente l'intensité du champ électrique oscillant. Ce dernier est maximal pour une tension d'environ 600 mV et permet d'obtenir un signal  $\mathcal{S}$  d'environ 4%. Dans le cas présent, la mesure est réalisée pour une orientation du champ magnétique perpendiculaire  $\varphi_B = 100^\circ$  choisie arbitrairement dans la mesure où l'orientation optimale de  $\varphi_B$  n'a pas encore été calibrée à ce stade.

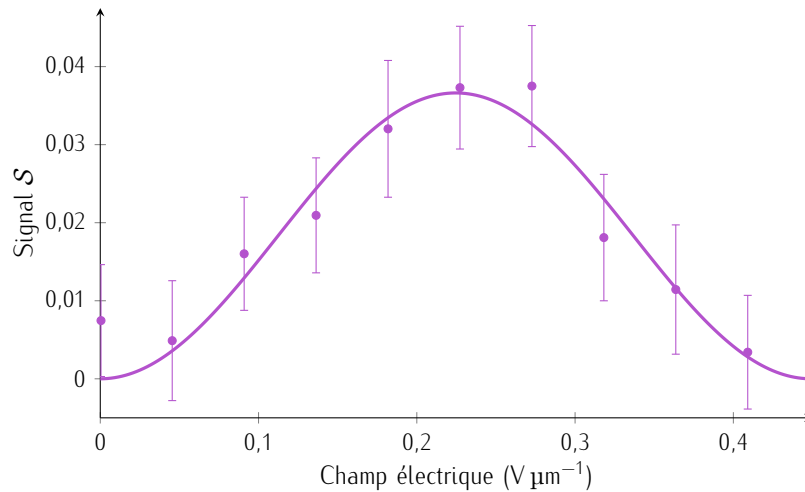


FIGURE 4.15 – (a) Évolution du signal  $\mathcal{S}$  en fonction du champ électrique appliqué. Le champ électrique est calculé en supposant que l'on se trouve dans un condensateur plan et vaut  $\frac{U}{d}$  avec  $U$  l'amplitude de la tension appliquée et  $d = 2,2 \mu\text{m}$  qui est l'espacement entre les deux lignes d'or. Dans ce cas, un champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$  est appliqué suivant l'orientation  $\varphi_B = 100^\circ$  et la fréquence du champ électrique oscillant est de  $f_E = 127 \text{ kHz}$ . La fonction d'ajustement est décrite par  $\mathcal{F} = \mathcal{A} \sin^2\left(\frac{\varphi_{\text{Stark}}}{2}\right)$  avec  $\mathcal{A}$  qui prend en compte le fait que le signal n'évolue pas entre 0 et 1.

On peut dans un dernier temps, déterminer l'effet de la direction du champ magnétique perpendiculaire sur le signal du champ électrique obtenu afin de connaître les orientations du champ magnétique  $\varphi_B$  qui maximisent le signal  $\mathcal{S}$ . Pour cela, on se place à une amplitude de 600 mV et on compense le champ magnétique terrestre le long de l'axe du centre NV (soit  $B_{\text{NV}} = -B_{\text{terre}}^{\text{NV}}$ ). La norme du champ magnétique perpendiculaire est de 1 mT et le signal  $\mathcal{S}$  est mesuré en fonction de l'angle  $\varphi_B$  (voir Figure 4.16 (a)). On observe bien une dépendance de l'effet Stark suivant la direction du champ magnétique perpendiculaire. Cependant, les résultats expérimentaux ne sont pas complètement en accord avec la théorie (voir Figure 4.3). En effet, le calcul prédit quatre lobes lorsque l'on fait tourner le champ magnétique perpendiculaire sur  $360^\circ$  tandis que seulement deux sont observés expérimentalement. La raison devient claire lorsque l'on s'intéresse à l'évolution de l'écartement entre les deux groupes de trois raies  $\Delta v_3$  puisque l'on constate que ce dernier augmente pour les angles  $\varphi_B$  où l'on ne mesure aucun signal provenant du champ électrique (voir Figure 4.16 (b)). Autrement dit, un champ magnétique est présent le long de l'axe du centre NV et provoque un écartement entre les deux groupes de trois raies de résonance par effet Zeeman, ce qui a pour conséquence de masquer le signal du champ électrique. Ce champ magnétique n'apparaît cependant pas dans la mesure d'écho de spin car il est statique.



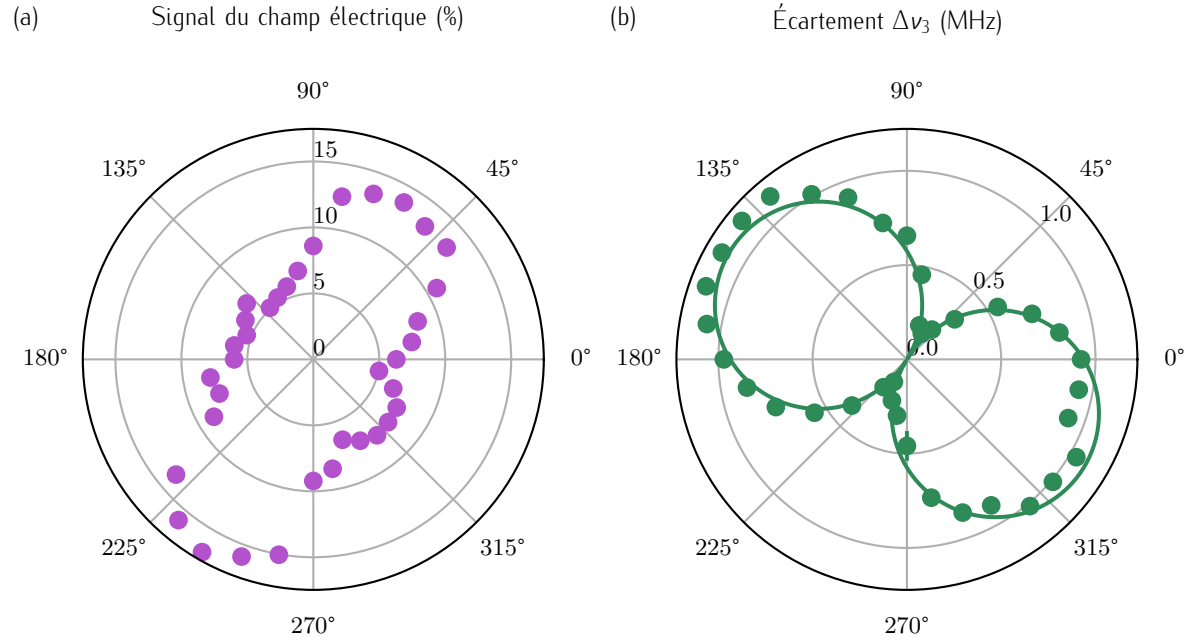


FIGURE 4.16 – (a) Évolution du signal  $\mathcal{S}$  en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire déterminé par l'angle  $\varphi_B$ . La norme du champ magnétique est de 1 mT. (b) Évolution de l'écartement entre les deux groupes de trois raies de résonance  $\Delta\nu_3$  en fonction de l'angle  $\varphi_B$ . La fonction d'ajustement est donnée par l'équation 4.16 et donne  $\delta\theta_{\text{NV}} = 1,3^\circ$  et  $\delta\varphi_{\text{NV}} = 2,4^\circ$ .

Cette observation indique d'abord que le champ magnétique perpendiculaire  $B_\perp$  appliqué dans les expériences n'est pas assez intense pour s'affranchir de petites variations de la composante du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$ . Ces variations proviennent a priori d'un alignement imparfait du champ magnétique  $\mathbf{B}$  dans le plan perpendiculaire. Pour quantifier cet effet, on peut commencer par écrire le champ magnétique  $\mathbf{B}$  que l'on applique sur le centre NV. Ce champ magnétique purement perpendiculaire s'écrit :

$$\mathbf{B} = B_\perp \begin{pmatrix} -\cos(\varphi_B) \sin \varphi_{\text{NV}} - \sin \varphi_B \cos \theta_{\text{NV}} \cos \varphi_{\text{NV}} \\ \cos \varphi_B \cos \varphi_{\text{NV}} - \sin \varphi_B \cos \theta_{\text{NV}} \sin \varphi_{\text{NV}} \\ \sin \varphi_B \sin \theta_{\text{NV}} \end{pmatrix} \quad (4.15)$$

Bien que dans le cas idéal, la composante du champ magnétique le long de l'axe du centre NV  $B_{\text{NV}}$  soit nulle, on peut évaluer l'effet sur  $B_{\text{NV}}$  de petites variations dans les angles  $\delta\theta_{\text{NV}}$  et  $\delta\varphi_{\text{NV}}$  correspondant à un mauvais alignement. Pour cela, on projette sur l'axe du centre NV  $\mathbf{u}_{\text{NV}} = (\cos \varphi_{\text{NV}} \sin \theta_{\text{NV}}, \sin \varphi_{\text{NV}} \sin \theta_{\text{NV}}, \cos \theta_{\text{NV}})$ , le champ magnétique  $\mathbf{B}(\theta_{\text{NV}} + \delta\theta_{\text{NV}}, \varphi_{\text{NV}} + \delta\varphi_{\text{NV}})$ . En faisant l'approximation que les angles  $\delta\theta_{\text{NV}}$  et  $\delta\varphi_{\text{NV}}$  sont très petits on peut écrire au premier ordre  $\cos(\delta\theta_{\text{NV}}) \sim \cos(\delta\varphi_{\text{NV}}) \sim 1$  et  $\sin(\delta\theta_{\text{NV}}) \sim \delta\theta_{\text{NV}}$  ainsi que  $\sin(\delta\varphi_{\text{NV}}) \sim \delta\varphi_{\text{NV}}$  et on obtient alors :

$$\delta B_{\text{NV}} = B_\perp [\sin(\varphi_B) \delta\theta_{\text{NV}} - \cos(\varphi_B) \sin(\theta_{\text{NV}}) \delta\varphi_{\text{NV}}] \quad (4.16)$$

Par le biais d'un ajustement de cette expression du champ magnétique le long du centre NV en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp}$ , il est possible d'expliquer de manière presque parfaite l'évolution de l'écartement entre les deux groupes de trois raies de résonance  $\Delta\nu_3$  pour  $\delta\theta_{NV} = 1,3^{\circ}$  et  $\delta\varphi_{NV} = 2,4^{\circ}$  (voir [Figure 4.16 \(b\)](#)). Cette déviation du champ magnétique par rapport au plan perpendiculaire provient donc d'une erreur liée à la précision de notre mesure des angles et à la non-uniformité du champ magnétique généré par les bobines.

## Mesure quantitative du champ électrique

L'étape suivante est de remonter à l'information du champ électrique à partir du signal  $\mathcal{S}$ . La phase accumulée sous l'effet du champ électrique oscillant de fréquence  $f_E$  durant la séquence de mesure est proportionnelle au champ électrique. Elle dépend de la variation  $\Delta f_{\pm}$  induite par le champ électrique introduite dans la [Sous-Partie 4.1.1](#). On définit  $f_{\pm}^{AC}$  les fréquences des états  $|-\rangle$  et  $|+\rangle$  en présence d'un champ électrique oscillant  $E^{AC} = E \sin(2\pi f_E t - \psi_{\text{retard}})$  avec  $\psi_{\text{retard}}$  la phase décrivant le retard entre la première impulsion micro-onde  $\frac{\pi}{2}$  et le champ électrique oscillant. On peut alors réécrire l'équation 4.12 :

$$f_{\pm}^{AC} = [(d_{\parallel} E_{NV}) \mp \cos(2\varphi_B + \varphi_E) d_{\perp} E_{\perp}] \sin(2\pi f_E t - \psi_{\text{retard}}) \quad (4.17)$$

En intégrant sur la séquence en fonction du temps avec  $f_{\pm} = f_{\pm}(0) + f_{\pm}^{AC}$ , on obtient l'expression de la phase  $\varphi_{\text{Stark}}$  accumulée pendant le protocole de mesure en fonction du champ électrique. Seul le champ électrique oscille durant le protocole de mesure, le terme  $f_{\pm}(0)$  qui relie les contributions statiques va donc s'annuler tandis que la contribution liée au champ électrique oscillant  $\varphi_{\text{Stark}}$  va s'additionner, ce qui permet de s'affranchir des problèmes de champs électriques parasites. Enfin, en prenant en compte le fait que la contribution du champ électrique le long de l'axe du centre NV est très faible devant celle perpendiculaire ( $d_{\parallel} = 0,35 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  [88] et  $d_{\perp} = 17 \times 10^{-2} \text{ Hz m V}^{-1}$  [88]), on peut négliger le terme  $d_{\parallel} E_{NV}$  et ainsi obtenir :

$$\varphi_{\text{Stark}} = 2\pi \int_{\frac{\psi_{\text{retard}}}{2\pi f_E}}^{\frac{\tau}{2}} f_{\pm}^{AC} dt - 2\pi \int_{\frac{1}{f_E} - \frac{\tau}{2}}^{\frac{1}{f_E}} f_{\pm}^{AC} dt = \frac{E_{\perp}}{f_E} [1 + \cos \psi_{\text{retard}} (1 - 2 \cos(\pi f_E \tau))] \quad (4.18)$$

Finalement, dans les mesures présentées dans ce chapitre, on rappelle que le signal obtenu  $\mathcal{S}$  est décrit de la manière suivante  $\mathcal{S} = \mathcal{A} \sin^2(\frac{\varphi_{\text{Stark}}}{2})$ . Ceci permet alors d'écrire  $E_{\perp}$  en fonction du signal  $\mathcal{S}$  comme :

$$E_{\perp} = \frac{2 \arcsin(\sqrt{\frac{\mathcal{S}}{\mathcal{A}}}) f_E}{1 + \cos \psi_{\text{retard}} (1 - 2 \cos(\pi f_E \tau))} \quad (4.19)$$

Cependant, pour conclure sur une mesure quantitative de la composante perpendiculaire du champ électrique  $E_{\perp}$ , il est nécessaire de quantifier plusieurs paramètres qui n'ont pas été pris en considération lors de ces expériences préliminaires.

Ces paramètres sont :

- La phase  $\psi_{\text{retard}}$  du champ électrique oscillant décrivant le retard entre la fin de l'impulsion micro-onde et le début du champ électrique oscillant.
- Les angles  $\varphi_B$  et  $\varphi_E$  qui correspondent aux angles dans le plan  $(xy)$  entre les champs magnétique et électrique avec l'axe de quantification du centre NV. Ces angles sont déterminés par rapport à la position d'un atome de carbone [87].

## Extension de la mesure à l'imagerie de champ électrique

Comme on vient de le voir, la mesure du champ électrique ne fonctionne de façon fiable que dans le cas d'un champ électrique oscillant. Pour étudier des matériaux ferroélectriques qui génèrent des champs de fuites statiques, la solution est de synchroniser l'oscillation de la pointe avec la séquence d'écho de spin afin de convertir le gradient spatial de champ électrique en variation temporelle. La preuve de principe de cette approche a été récemment apportée dans le contexte de l'imagerie magnétique, via la mesure du champ magnétique statique généré par les terrasses atomiques d'un matériau antiferromagnétique (oxyde de chrome III  $Cr_3O_2$ ) [314]. En effet, dans le microscope à force atomique, la pointe est collée sur un diapason, qui est excité à sa fréquence de résonance. La boucle de rétroaction du microscope adapte la position du scanner en fonction des variations de l'amplitude d'oscillation du diapason afin de maintenir constante la distance à l'échantillon. Dans notre cas, on utilise la résonance du diapason autour de 30 kHz. Cependant, pour pouvoir utiliser cette oscillation, il est nécessaire d'avoir des temps de cohérence au minimum de l'ordre de la période de l'oscillation soit environ  $T_2 \sim 30 \mu\text{s}$  pour réaliser la séquence d'écho de spin utilisée dans ce chapitre. Cette valeur est atteinte pour certaines pointes en diamant. De plus, lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculaire, ce temps de cohérence  $T_2$  augmente [315]. On peut le voir, par exemple, sur la pointe en diamant ayant été utilisée pour les mesures du champ électrique statique (voir [Sous-Partie 4.2.2](#)) avec un temps de cohérence  $T_2 = 49 \pm 5 \mu\text{s}$  qui atteint  $T_2 = 86 \pm 16 \mu\text{s}$  lorsque l'on applique un champ magnétique perpendiculaire de  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$  (voir [Figure 4.17](#)).

Au-delà de cette question, deux aspects expérimentaux restent limitants et nécessitent d'être modifiés ou améliorés. Tout d'abord le champ magnétique externe appliqué n'est pas assez intense pour s'affranchir des fluctuations de champ magnétique suivant l'axe du centre NV. De plus, il ne semble pas uniforme spatialement. Le second point limitant concerne l'antenne micro-onde lithographiée qui génère une excitation qui dépend de la position sur l'échantillon. Cela impose de mesurer régulièrement la durée de l'impulsion  $T_{\pi}$ , ralentissant ainsi la cartographie du champ électrique. Je discute plus en détail sur ces deux aspects dans l'[Annexe E](#).

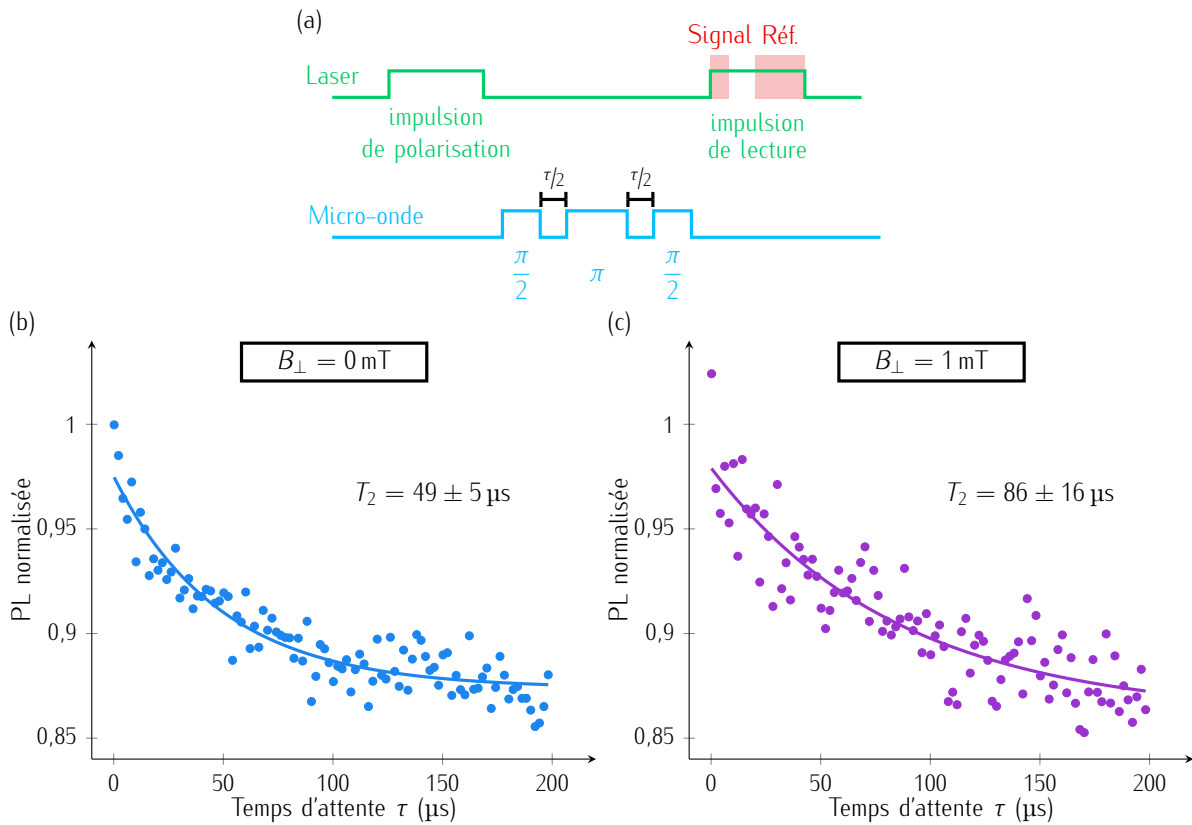


FIGURE 4.17 – (a) Séquence de mesure du temps de cohérence  $T_2$  décrite en détail dans le Chapitre 1. (b)-(c) Courbe caractéristique de la photoluminescence en fonction de la durée variation  $\tau$  pour un champ magnétique perpendiculaire  $B_{\perp} = 0 \text{ mT}$  et  $B_{\perp} = 1 \text{ mT}$  respectivement. La fonction d'ajustement est une exponentielle décroissante et permet d'extraire  $T_2 = 49 \pm 5 \mu\text{s}$  (b) et  $T_2 = 86 \pm 16 \mu\text{s}$  (c).

## Conclusion

Dans ce chapitre, l'objectif principal est la mise en place de l'électromètre NV à balayage. J'ai dans un premier temps discuté des conditions expérimentales nécessaires afin de détecter un effet du champ électrique sur le spin électronique du centre NV. Il s'agit d'appliquer un champ magnétique perpendiculaire à l'axe de quantification du centre NV bien supérieur à la composante du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  afin de supprimer l'effet Zeeman.

Dans un second temps, je me suis placé dans des conditions expérimentales adéquates afin de détecter un champ électrique statique généré par un condensateur lithographié. Ces mesures ont mis en évidence la présence de champs électriques parasites rendant impossible une mesure fiable de la valeur du champ généré par l'échantillon. Je me suis alors tourné ensuite vers la mesure d'un champ électrique oscillant par une méthode d'écho de spin. Le champ électrique n'est alors plus mesuré sur le spectre de résonance magnétique mais sur l'évolution de la phase dans le temps lorsque le système

est placé dans une superposition quantique d'états. Ce moyen permet notamment de s'affranchir de tous les champs électriques parasites statiques. Par cette méthode, il a été possible de détecter, d'une part, le champ électrique provenant de l'échantillon et, d'autre part, de caractériser l'évolution du signal électrique en fonction de l'orientation du champ magnétique perpendiculaire.

Enfin, bien qu'il soit possible à l'heure actuelle de détecter des variations de champ électrique, l'extension de la mesure à l'imagerie du champ électrique nécessite de surmonter les deux limitations actuelles du dispositif expérimental. Il s'agit de mettre en place un système pour augmenter le champ magnétique perpendiculaire de biais appliqué au centre NV et l'utilisation d'une antenne micro-onde externe fixe. Par ailleurs, il sera nécessaire de synchroniser l'oscillation de la pointe en diamant avec la séquence de mesure pour cartographier le champ électrique à l'échelle nanométrique. Notons que l'imagerie d'un champ électrique AC et DC avec un centre NV unique au bout d'une pointe en diamant a pu être récemment démontrée avec une sensibilité au champ électrique AC de  $26 \text{ mV } \mu\text{m}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$  et une résolution spatiale inférieure à 100 nm (limitée par la distance entre le centre NV dans la pointe en diamant et la surface de l'échantillon  $d_{\text{NV}}$ ) [316]. Ceci montre qu'en améliorant les limitations actuelles de notre dispositif expérimental, le développement du microscope NV à balayage en électromètre NV est possible et prometteur notamment pour l'étude de matériaux ferroélectriques (cristaux, films ou même bidimensionnels).

# CONCLUSION ET PERSPECTIVES

---

Ce travail de thèse a contribué à l'extension des modalités d'imagerie à balayage recourant à des pointes en diamant hébergeant des centres NV, pour en faire un outil polyvalent aussi bien capable de cartographier le champ magnétique que les variations de température, le bruit magnétique ou le champ électrique.

**Dans le cas de la thermométrie**, j'ai commencé par caractériser les performances d'une pointe en diamant optimisée en mesurant d'une part sa sensibilité et d'autre part sa résolution spatiale. La mesure de la température exploite ici la dépendance en température de la fréquence de résonance magnétique du centre NV. En ce qui concerne la sensibilité, elle a été estimée autour du  $K/\sqrt{\text{Hz}}$  sous des excitations laser et micro-onde continues pour cette première génération de pointe. Plusieurs possibilités d'amélioration existent comme l'utilisation d'une pointe orientée (113), la modification du nombre de centres NV dans la pointe ou la mise en place de protocoles de découplage dynamique adaptés. La résolution spatiale, quant à elle, est directement limitée par le diamètre de l'extrémité de la pointe, actuellement de l'ordre de 30 nm. Sa mesure nécessite donc une source de chaleur de cette dimension. Les différentes tentatives (structures thermoplasmoniques, constriction dans une ligne de courant ..) explorées dans ce travail de thèse pour trouver un échantillon de test convenable ont permis de converger vers une nanostructure composée d'un nanofil semi-conducteur avec un dopage électronique et chauffé par effet Joule.

L'un des enjeux du développement d'un outil capable de sonder la température à l'échelle nanométrique est, par exemple, la détection de points chauds dans la microélectronique. En effet, la miniaturisation des composants électroniques nécessite de détecter des échauffements anormaux dans les microprocesseurs liés à des zones défectueuses de taille nanométrique [142]. La compréhension des phénomènes à l'origine de ces zones de chaleur anormales pourrait permettre d'améliorer les performances des composants électroniques.

**Dans le cas de la relaxométrie**, l'objectif était de mettre en place dans le microscope NV à balayage une technique tout optique pour l'étude de sources de bruit magnétique. Pour commencer, j'ai introduit un modèle simplifié à trois niveaux pour comprendre l'évolution des propriétés photophysiques du centre NV sous l'effet de bruit magnétique. Ensuite, à l'aide d'une source de bruit calibrée, j'ai expérimentalement mesuré son influence sur l'émission de photoluminescence du centre NV et confronté mes données au modèle simplifié. Cette expérience a confirmé qu'il est possible de sonder, de façon tout optique, la présence d'un bruit magnétique sur le niveau de photoluminescence du centre NV. Par la suite, la sensibilité de cette nouvelle méthode de détection optique du bruit

magnétique est comparée à la méthode de mesure communément utilisée dans la littérature. Dans les deux cas, la sensibilité est de l'ordre du  $\mu\text{T}^2 \text{MHz}^{-1} / \sqrt{\text{Hz}}$ . Cependant la méthode tout optique présente l'avantage de ne nécessiter qu'une mesure de la photoluminescence et surtout d'utiliser une très faible puissance d'excitation laser. Enfin, cette technique a été intégrée dans le microscope NV à balayage pour cartographier le bruit magnétique produit par un matériau antiferromagnétique synthétique.

La détection de bruit magnétique par relaxométrie permet l'étude des ondes de spin excitées thermiquement ou de façon cohérente avec un signal micro-onde, ou bien de sonder les propriétés de transport de spin [317]. De plus, une seconde application de la relaxométrie est la mesure de la conductivité électrique grâce au bruit de Johnson résultant de l'agitation thermique des électrons dans un matériau conducteur.

**Dans le cas de l'électrométrie**, j'ai commencé par présenter le Hamiltonien du spin électronique du centre NV en incluant le couplage avec le champ électrique dans le but de mettre en évidence les conditions de mesures optimales. Je me suis ensuite placé dans ces conditions pour mesurer sur les fréquences de résonance magnétique le champ électrique statique, puis oscillant généré dans un condensateur de dimension micrométrique. Dans ces études préliminaires, la mesure d'un champ oscillant grâce à une séquence de découplage dynamique permet d'entrevoir une extension à l'imagerie de textures ferroélectriques.

En effet, de récents travaux ont démontré la présence de composantes chirales inattendues dans les parois ferroélectriques qu'il serait donc intéressant de mesurer de façon quantitative. De plus, des observations montrent la stabilisation de structures ferroélectriques hélicoïdales [274] voire même topologiques [275] qui sont analogues aux textures magnétiques non colinéaires [276, 277].

## Perspectives : un microscope multifonctionnel

La perspective la plus intéressante de l'extension du magnétomètre en un outil polyvalent réside dans la possibilité de sonder simultanément plusieurs propriétés physiques. Par exemple, en combinant deux à deux les modes de mesures, on peut envisager d'étudier les questions suivantes (voir [Figure 4.18](#)) :

### Thermométrie – Magnétométrie

La magnétométrie NV permet déjà la caractérisation du courant traversant une couche de graphène [58, 59]. Cependant, la possibilité de cartographier la température couplée à l'imagerie du champ magnétique pour reconstruire le transport électronique rendrait alors possible de corrélérer la distribution de points chauds avec celle du courant et d'obtenir une meilleure compréhension de l'effet des défauts dans la conduction.

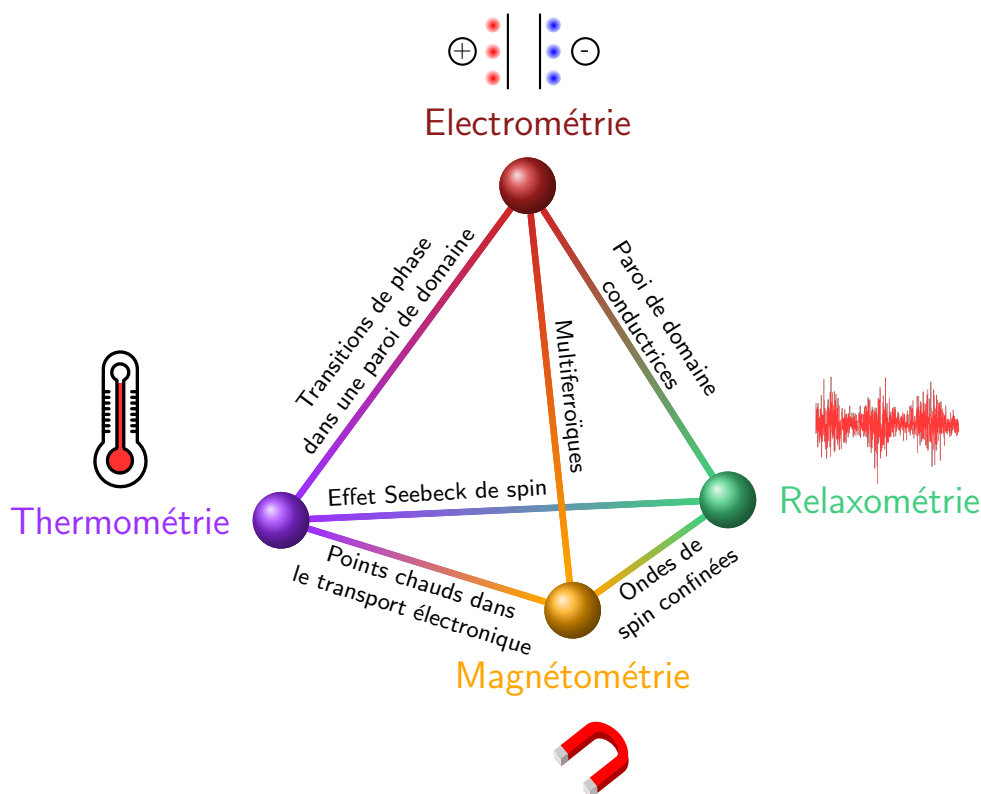


FIGURE 4.18 – Schéma présentant une partie des phénomènes physiques accessibles grâce à un microscope NV à balayage multifonctionnel.

### Magnétométrie – Électrométrie

Les matériaux multiferroïques hébergent à la fois un ordre magnétique et un ordre électrique [280]. Grâce au couplage magnétoélectrique entre ces deux ordres, ces matériaux sont très prometteurs pour développer le contrôle électrique, et donc à faible puissance de l'état magnétique. En combinant magnéto-métrie et électrométrie, on pourra sonder la structure interne d'objets hybrides magnétoélectriques et mieux caractériser les couplages entre ces deux ordres.

### Relaxométrie – Électrométrie

Les parois ferroélectriques présentent souvent une conductivité électrique différente de celle du matériau qui les héberge en raison de leurs propriétés structurales et de symétrie [318]. Le microscope en mode relaxométrie-électrométrie permet aussi d'étudier cet aspect en associant des mesures locales de conductivité à la mesure de la structure interne des parois.

### Relaxométrie – Magnétométrie

Les propriétés des ondes de spin sont modifiées lorsqu'elles sont confinées dans les parois de domaine qui se comportent comme des guides d'ondes reconfigurables pour diriger leur propagation. L'étude de ces ondes de spin confinées nécessite de pouvoir imager, d'une part, le champ magnétique



statique produit par la paroi de domaine et, d'autre part, le bruit magnétique provenant des ondes de spin, et donc d'utiliser à la fois la relaxométrie et la magnétométrie.

### **Thermométrie – Relaxométrie**

Il a été observé que lorsqu'un aimant est placé dans un gradient de température, il produit un courant de spin [319]. Il s'agit de l'effet Seebeck de spin qui permet de faire passer un courant de spin sans courant de charge sur de grandes distances. En combinant la détection du gradient de température avec la mesure des propriétés de transport de spin par relaxométrie, le microscope NV pourrait être capable de sonder cet effet.

### **Thermométrie – Électrométrie**

Au niveau des parois de domaine ferroélectriques, il est possible, pour des raisons de symétrie que des transitions de phases spécifiques et différentes de celles existantes dans le reste du matériau se produisent [320]. En cartographiant à la fois le champ électrique et la température à l'échelle locale, on pourrait envisager de détecter de telles transitions locales.

### **Et au-delà...**

L'utilisation du microscope NV n'est bien entendu pas limitée à combiner les modes de mesure deux par deux. D'autres objets hybrides encore plus complexes pourraient être étudiés, comme les ondes de spin dans les parois multiferroïques. Les possibilités de ce microscope NV à balayage polyvalent en feraient ainsi un outil unique pour l'exploration de la matière condensée.

# LE MICROSCOPE NV À BALAYAGE

---

La combinaison entre la grande sensibilité au champ magnétique du centre NV et la résolution spatiale nanométrique d'un microscope à force atomique (AFM) rend possible la réalisation de cartographies du champ magnétique à cette échelle. L'architecture d'un tel magnétomètre à centres NV à balayage est la suivante. Elle comprend une partie optique et une partie de microscopie à force atomique

Un microscope confocal permet d'exciter le centre NV par un laser vert et de collecter sa photoluminescence dans le rouge. Le laser vert continu de longueur d'onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  (*Laser Quantum gem 532*) passe d'abord dans un système de lentilles pour adapter son diamètre à environ 2 mm. Ce faisceau est ensuite dirigé vers un modulateur acousto-optique MOA (*AA opto-electronic MT200-A0.5-VIS*) afin d'être en capacité de réaliser des séquences d'impulsions laser avec un temps de montée pouvant atteindre 10 ns. C'est par le biais d'une lame demi-onde ( $\frac{\lambda}{2}$ ) disposée juste devant un cube séparateur de faisceau polarisé (PBS) qu'il est possible de contrôler la puissance laser puis une seconde lame demi-onde ( $\frac{\lambda}{2}$ ) permet de choisir la polarisation du faisceau vert d'excitation. Le faisceau vert est ensuite réfléchi par un miroir dichroïque sur un miroir contrôlable (MC) (*NEWPORT Model-FSM-300-02*) afin de balayer le laser vert pour le focaliser sur le centre NV. Le faisceau vert est ensuite focalisé par un objectif de microscope d'ouverture numérique 0,9 et une distance de travail de 1 mm (*Olympus MPLFLN100x*). Ce même objectif de microscope collecte la photoluminescence du centre NV qui fait le chemin inverse. C'est au travers du miroir dichroïque qu'il est possible de dissocier l'excitation par le laser vert et la collection de la photoluminescence du centre NV dans le rouge. Le signal de photoluminescence du centre NV n'est pas réfléchi par le miroir dichroïque mais transmis vers le système de collection. Le système de collection est composé d'un trou de diamètre 50  $\mu\text{m}$  positionné dans le plan focal conjugué du centre NV afin de pouvoir isoler le signal du centre NV. Le signal est ensuite filtré spectralement avec un filtre interférentiel sélectionnant les longueurs d'onde entre 600 – 800 nm dans le but de collecter sur les détecteurs uniquement le signal provenant du défaut tout en filtrant la lumière résiduelle en dehors de la photoluminescence de ce dernier (*BrightLine<sup>®</sup> Semrock FF01-709/167-25*). La photoluminescence du centre NV est finalement détectée à l'échelle du photon unique par des photodiodes à avalanche (*Excelitas technologies SPCM-AQR-14*) ainsi qu'un module de comptage résolu en temps (*FastComTech*) qui permettent de compter le nombre de photons arrivant par seconde (voir

Figure A.1 (a)). Sur l'échantillon est positionnée une antenne micro-onde et à l'aide d'un générateur micro-onde (*Rohde & Schwarz SMB100A*) on peut enregistrer le spectre de résonance magnétique.

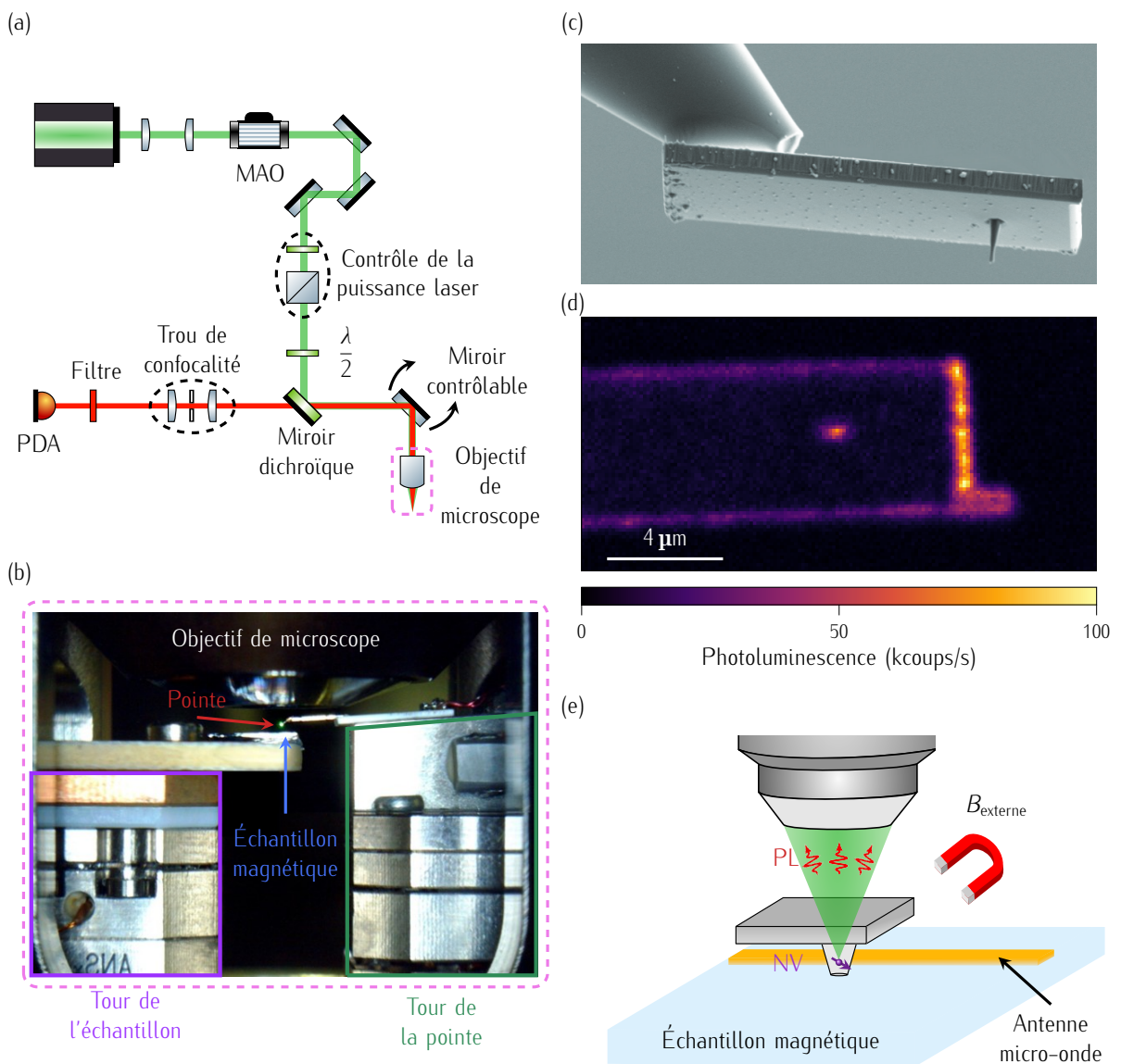


FIGURE A.1 – (a) Schéma simplifié du dispositif expérimental représentant le microscope confocal. (b) Photographie de l'objectif de microscope focalisant le faisceau vert sur la pointe en diamant. En dessous de la pointe se trouve l'échantillon. Cet échantillon ainsi que la pointe sont tout deux disposés sur des tours composées de trois scanners X, Y et Z ainsi que des positionneurs X, Y et Z (référentiel du laboratoire). (c) Image au microscope électronique d'une pointe en diamant optimisée pour la mesure du champ magnétique de l'entreprise QNAMI (image extraite de <https://qnami.ch/>). (d) Carte de photoluminescence montrant l'émission d'un centre NV unique dans une pointe en diamant. (e) Schéma de la configuration de mesure du magnétomètre NV à balayage. L'échantillon magnétique est disposé très proche de la pointe et l'antenne micro-onde permet d'enregistrer le spectre de résonance magnétique à chaque pixel.

La pointe en diamant hébergeant les centres NV est montée sur un dispositif de microscopie à force atomique. Pour réaliser une cartographie du champ magnétique, l'échantillon magnétique sondé est balayé sous la pointe. Cet échantillon comprend souvent une ligne en or lithographiée jouant le rôle d'antenne micro-onde. Deux empilements de positionneurs ( $ANP_{x51}/RT$  et  $ANP_{z51}/RT$ ) et scanners ( $ANS_{xy50}/RT$  et  $ANS_{z50}/RT$ ) permettent à la fois de déplacer l'échantillon et la pointe en diamant dans les trois directions de l'espace ( $X$ ,  $Y$  et  $Z$  référentiel du laboratoire). Les positionneurs ont une portée de  $3 \times 3 \times 2,5 \text{ mm}^3$  et sont notamment utilisés pour réaliser de grands déplacements avec une précision micrométrique. Les scanners ont une portée bien plus limitée ( $30 \times 30 \times 4,3 \mu\text{m}^3$ ) mais permettent une précision nanométrique (voir [Figure A.1 \(b\)](#)). La pointe en diamant se trouve au bout d'un cantilever en diamant relié à un diapason en quartz (*tuning fork* en anglais) avec une fréquence de résonance autour de 30 kHz. Ce sont les scanners de l'échantillon qui sont utilisés pour réaliser des cartographies avec d'une part le scanner  $Z$  qui permet d'approcher l'échantillon très proche de la pointe en diamant et c'est en balayant l'échantillon en dessous de la pointe à l'aide des scanners  $X$  et  $Y$  que l'on va pouvoir sonder localement le champ produit par ce dernier (voir [Figure A.1 \(e\)](#)). De plus, le diapason est excité à la fréquence de résonance. Ainsi il est possible de détecter les variations de l'amplitude d'oscillation du diapason et ainsi par la boucle de rétroaction du microscope à force atomique (AFM), d'adapter sa position afin de conserver une distance constante entre la pointe et l'échantillon et ainsi mesurer la topographie de l'échantillon.

Ce dispositif permet d'obtenir des sensibilités de l'ordre du  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  sous excitations micro-onde et laser continues, tout en ayant une résolution spatiale de l'ordre de 50 nm [33]. Cette résolution spatiale est limitée par la distance entre le centre NV dans la pointe en diamant et la surface de l'échantillon magnétique ( $d_{\text{NV}}$ ). La mesure en chaque pixel du spectre de résonance magnétique du centre NV offre la possibilité de réaliser une mesure quantitative du champ magnétique à l'échelle nanométrique sans perturber l'échantillon magnétique et ce, sur une large gamme de température [84, 85, 195].

Les pointes en diamant hébergeant un centre NV unique utilisé dans le cadre de cette thèse ont été développées par l'entreprise QNAMI [34, 132]. Une image de microscopie électronique d'une de ces pointes est montrée sur la [figure A.1 \(c\)](#) ainsi qu'une carte typique de la photoluminescence montrant l'émission du centre NV isolé dans la pointe en diamant sur la [figure A.1 \(d\)](#). La pointe en diamant a une forme cylindrique ou conique, et joue le rôle de guide d'onde dans le but d'optimiser la collection du signal de photoluminescence. De plus, l'implantation se fait à l'extrémité de pointe et il est possible de contrôler la distance du centre NV du bout de la pointe en diamant par l'énergie d'implantation, typiquement de  $d_{\text{NV}} \sim 50 \text{ nm}$ . Cette grandeur peut être déterminée précisément par la procédure de calibration décrite dans l'[Annexe B](#).



# CARACTÉRISATION DE LA DISTANCE DE VOL

---

La distance de vol du centre NV  $d_{\text{NV}}$  est la grandeur qui caractérise la distance du centre NV et la surface de l'échantillon. Cette grandeur est importante puisqu'elle détermine la résolution spatiale lors de la mesure du champ magnétique et, de ce fait, il est souvent nécessaire de la mesurer avant de pouvoir réaliser des cartographies du champ de fuite. Pour cela, une approche propose de mesurer le champ de fuite d'une ligne ferromagnétique d'aimantation uniforme et normale au plan [321]. Si on considère une ligne infinie suivant la direction  $Y$  et d'épaisseur  $h < d_{\text{NV}}$ , les composantes du champ magnétique  $\mathbf{B}$  dans le référentiel du laboratoire  $(X, Y, Z)$  se décomposent comme :

$$\begin{cases} B_X(x) = \frac{\mu_0 \mathcal{M} h}{2\pi} \left( \frac{d_{\text{NV}}}{x^2 + d_{\text{NV}}^2} \right) \\ B_Y(x) = 0 \\ B_Z(x) = -\frac{\mu_0 \mathcal{M} h}{2\pi} \left( \frac{x}{x^2 + d_{\text{NV}}^2} \right) \end{cases} \quad (\text{B.1})$$

avec  $\mathcal{M}$  l'aimantation. En cartographiant le champ magnétique de fuite généré par une telle ligne, la connaissance de l'épaisseur  $h$  et de l'aimantation  $\mathcal{H}$  de la ligne ferromagnétique permet alors de remonter à la distance entre le centre NV et la surface de l'échantillon.

Pour déterminer expérimentalement cette distance  $d_{\text{NV}}$ , on réalise un profil du champ de fuite perpendiculairement à la ligne ferromagnétique. Pour cela, on enregistre le spectre de résonance magnétique en chaque pixel afin d'en extraire la valeur du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  sondé par le centre NV dans la pointe directement calculé par le décalage Zeeman des raies de résonance. Dans le cas montré sur la [figure B.1](#), la ligne est d'épaisseur  $h < 0,6$  mm et de largeur  $1 \mu\text{m}$  et, en ajustant par l'[équation B.1](#), on peut finalement déterminer que la hauteur de vol est de  $d_{\text{NV}} = 79 \pm 5$  nm. Ce paramètre peut être contrôlé lors de la création du centre NV par implantation ionique en ajustant l'énergie d'implantation [133]. Généralement cette distance de vol se situe entre 40 nm et 80 nm. Dans nos expériences, ce protocole de calibration permet de connaître la distance  $d_{\text{NV}}$  avec une incertitude de l'ordre de 10% qui provient des incertitudes sur l'épaisseur de la ligne ferromagnétique et sur la mesure de l'orientation du centre NV dans le référentiel du laboratoire [51].

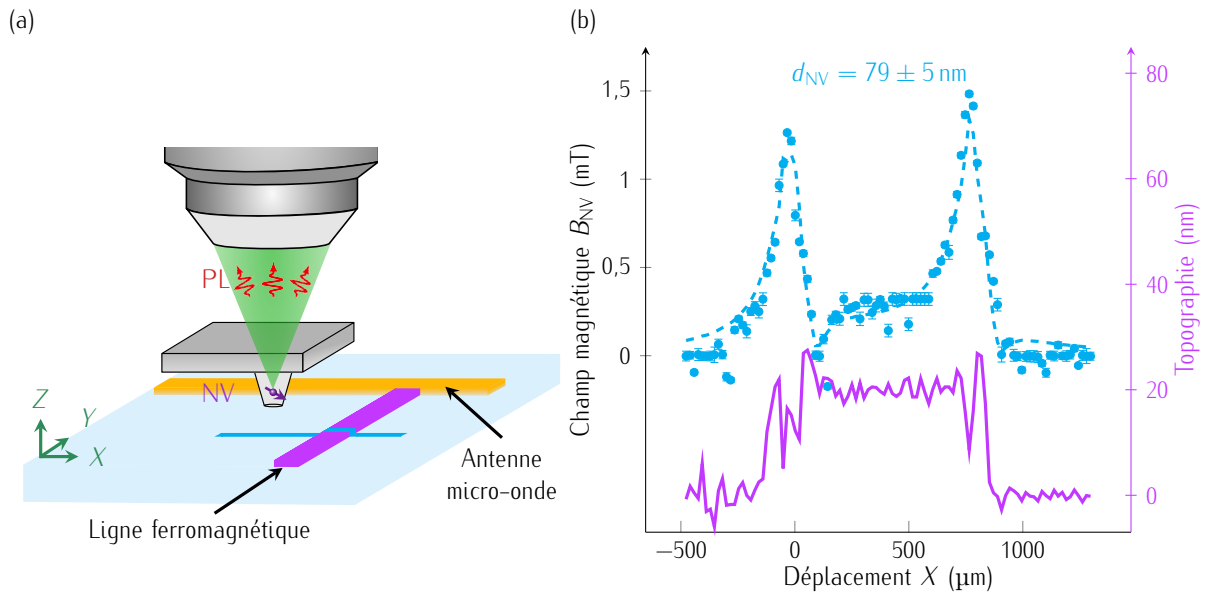


FIGURE B.1 – (a) Schéma du protocole de mesure de la distance de vol  $d_{NV}$  en mesurant le champ magnétique suivant une coupe (ici en bleu) perpendiculairement à la ligne ferromagnétique (en violet). (b) Profil du champ magnétique  $B_{NV}$  sondé par le centre NV dans la pointe (en bleu) et de la topographie (en violet), ce qui permet d'obtenir par l'ajustement décrit dans l'équation B.1 :  $d_{NV} = 79 \pm 5 \text{ nm}$ .

# MÉTHODE DE PROPAGATION INVERSE

---

Le magnétomètre à centre NV permet d'extraire la composante du champ magnétique  $B_{NV}$ . A priori, il ne renseigne pas au premier abord sur le champ magnétique vectoriel dans le référentiel du laboratoire  $(X, Y, Z)$ . Cependant, une méthode a été mise en place dans le but de reconstruire, à partir de cette composante  $B_{NV}$ , les composantes vectorielles du champ magnétique à l'aide de quelques hypothèses [322]. On suppose tout d'abord que les sources qui génèrent le champ magnétique se trouvent sur le même plan à une hauteur  $Z = 0$ . De plus, on émet l'hypothèse que le plan dans lequel on réalise la mesure de la composante du champ magnétique  $B_{NV}$  est parallèle à la surface de l'échantillon, à  $Z > 0$  et sans courant. Ainsi, les équations de Maxwell-Gauss et de Maxwell-Ampère s'écrivent :

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (C.1)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{B} = 0 \quad (C.2)$$

Dans l'espace de Fourier, en passant par les transformations  $\frac{\partial}{\partial X} = ik_X$  ainsi que  $\frac{\partial}{\partial Y} = ik_Y$  avec  $k_X = \frac{2\pi}{X}$  et  $k_Y = \frac{2\pi}{Y}$ , on peut obtenir le système d'équations suivant :

$$ik_Y \hat{B}_Z - \frac{\partial}{\partial Z} \hat{B}_Y = 0 \quad (C.3)$$

$$ik_X \hat{B}_Z - \frac{\partial}{\partial Z} \hat{B}_X = 0 \quad (C.4)$$

$$ik_X \hat{B}_Y - ik_Y \hat{B}_X = 0 \quad (C.5)$$

avec  $\hat{B}_X$ ,  $\hat{B}_Y$  et  $\hat{B}_Z$  les transformées de Fourier des composantes du champ magnétique  $B_X$ ,  $B_Y$  et  $B_Z$ .

Ceci nous permet d'extraire les composantes  $\hat{B}_X$  et  $\hat{B}_Y$  :

$$\hat{B}_X(k_X, k_Y, Z) = -i \frac{k_X}{k} \hat{B}_Z \quad (C.6)$$

$$\hat{B}_Y(k_X, k_Y, Z) = -i \frac{k_Y}{k} \hat{B}_Z \quad (C.7)$$

$$(C.8)$$

avec  $k = \sqrt{k_X^2 + k_Y^2}$ .



On a alors une relation entre les trois composantes du champ magnétique. De plus, dans l'espace réel, la projection du champ magnétique le long de l'axe de quantification du centre NV  $B_{NV}$  peut s'écrire :

$$B_{NV} = \cos \varphi_{NV} \sin \theta_{NV} B_X + \sin \varphi_{NV} \sin \theta_{NV} B_Y + \cos \theta_{NV} B_Z \quad (C.9)$$

Ceci permet, dans l'espace de Fourier, d'obtenir la composante  $\hat{B}_Z$  nécessaire pour extraire les composantes du champ magnétique  $\hat{B}_X$  et  $\hat{B}_Y$  et enfin les composantes du champ magnétique  $B_X$  et  $B_Y$  dans l'espace réel. On peut alors écrire  $\hat{B}_Z$  comme :

$$\hat{B}_Z = \frac{\hat{B}_{NV}}{-i \frac{k_X}{k} \cos \varphi_{NV} \sin \theta_{NV} - i \frac{k_Y}{k} \sin \varphi_{NV} \sin \theta_{NV} + \cos \theta_{NV}} \quad (C.10)$$

avec  $\varphi_{NV}$  et  $\theta_{NV}$  les angles du centre NV dans le repère du laboratoire.

La connaissance de ces angles est donc primordiale pour reconstituer les composantes vectorielles du champ magnétique. Le protocole expérimental pour extraire les angles  $\varphi_{NV}$  et  $\theta_{NV}$  est décrit dans l'[Annexe D](#).

# CALIBRATION DES ANGLES DU CENTRE NV

---

Dans la pointe en diamant, le centre NV implanté se trouve aléatoirement dans l'une des quatre orientations cristallographiques et peut alors être suivant les axes  $[111]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ ,  $[\bar{1}1\bar{1}]$  et  $[\bar{1}\bar{1}1]$ . Le protocole de mesure des angles  $\theta_{NV}$  et  $\varphi_{NV}$  représentant les angles entre l'axe de quantification du centre NV et le référentiel du laboratoire ( $X, Y, Z$ ), est l'objet de cette annexe. Pour déterminer ces deux angles, un champ magnétique vectoriel est généré à l'aide de six bobines de Helmholtz suivant les trois axes  $X, Y$  et  $Z$  (deux par axes). L'orientation du champ magnétique appliqué par les bobines est caractérisée par les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  qui correspondent aux angles entre ce dernier et l'axe du centre NV. La norme de ce champ magnétique est généralement de 1 mT, ce qui permet de se placer dans les conditions où la composante perpendiculaire du champ magnétique est négligeable. De ce fait, la position des deux raies de résonance dans le spectre de résonance magnétique, dépend uniquement et de façon linéaire, de l'amplitude du champ magnétique le long de l'axe du centre NV. Dans cette calibration, l'évolution d'une seule de ces deux raies est donc étudiée.

Dans un premier temps, l'angle  $\theta_B$  est fixé à  $90^\circ$ , ce qui a pour conséquence de se placer dans le plan  $(X, Y)$  dans le référentiel du laboratoire. Puis, on fait varier l'angle  $\varphi_B$  de  $0^\circ$  à  $90^\circ$  et on enregistre le spectre de résonance magnétique autour de la raie d'intérêt afin d'extraire la fréquence de résonance pour chacun de ces angles (voir [Figure D.1](#) (a)-(b)). L'angle  $\varphi_{NV}$  est alors égal à l'angle  $\varphi_B$  qui maximise l'effet Zeeman. Généralement, l'angle  $\varphi_{NV}$  est d'environ  $55^\circ$  ou  $125^\circ$ .

Lorsque l'on a déterminé  $\varphi_{NV}$ , l'angle  $\varphi_B$  est fixé à cette valeur, puis la même procédure est réalisée en modifiant l'angle  $\theta_B$  de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ . De la même manière, l'angle  $\theta_{NV}$  correspond à l'angle  $\theta_B$  qui maximise l'effet Zeeman (voir [Figure D.1](#) (c)-(d)). Cet angle est généralement d'environ  $0^\circ$  ou  $90^\circ$  mais peut être décalé de quelques degrés. Ce décalage provient de la légère inclinaison de la pointe en diamant lorsqu'elle est collée sur le diapason.

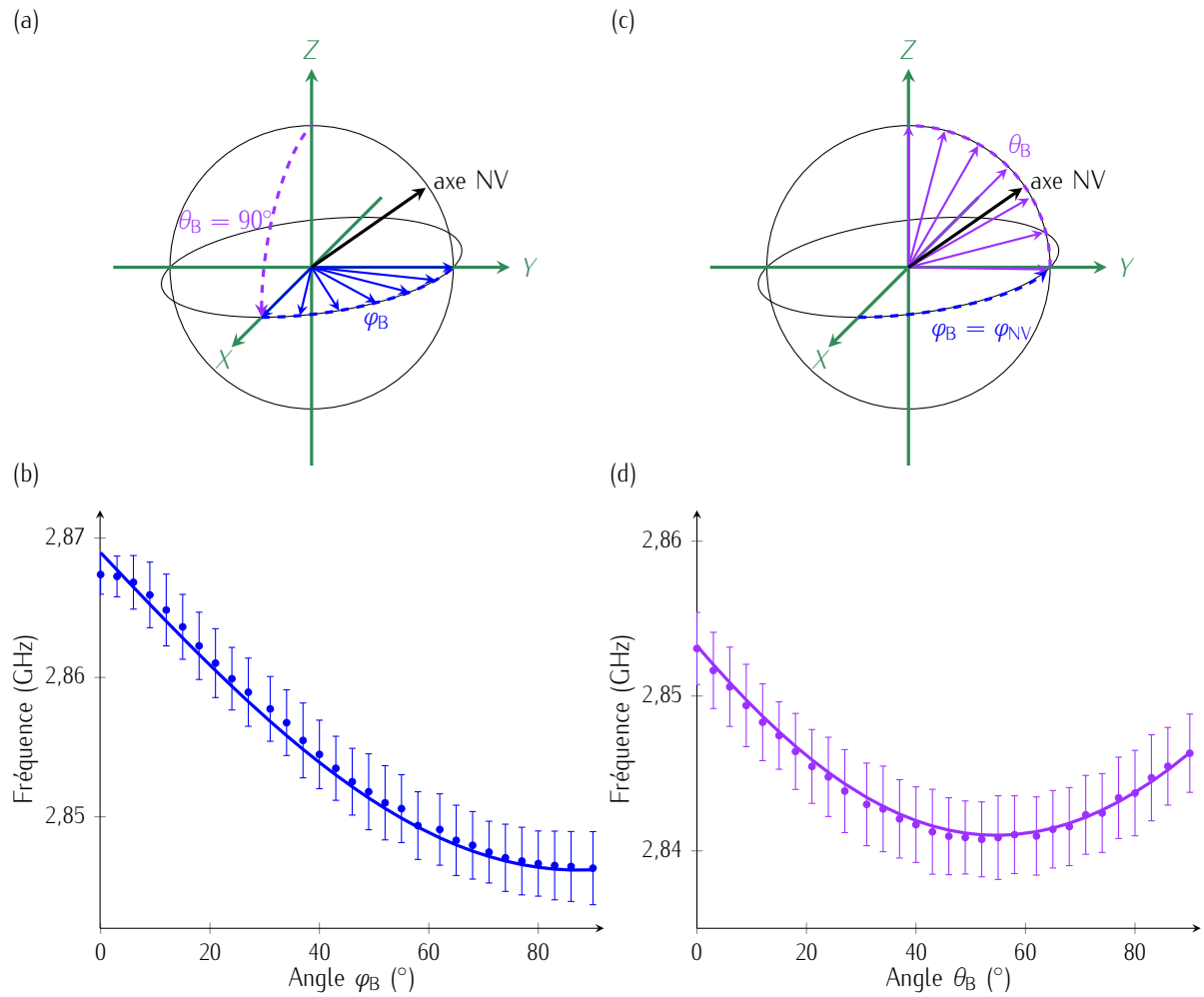


FIGURE D.1 – (a) Représentation schématique de la mesure de l'angle  $\varphi_{NV}$ . Le champ magnétique est appliqué avec un angle  $\theta_B$  fixé à  $90^\circ$  tandis que l'angle  $\varphi_B$  varie de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ . (b) Évolution de la fréquence de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué  $\varphi_B$ . Dans cet exemple,  $\varphi_{NV} = 87,5^\circ$ . (c) Représentation schématique de la mesure de l'angle  $\theta_{NV}$ . Le champ magnétique est appliqué avec un angle  $\varphi_B = \varphi_{NV}$  tandis que l'angle  $\theta_B$  varie de  $0^\circ$  à  $90^\circ$ . (d) Évolution de la fréquence de résonance en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué  $\theta_B$ . Dans cet exemple,  $\theta_{NV} = 55^\circ$ .

# PERSPECTIVES DE DÉVELOPPEMENT DE L'ÉLECTROMÉTRIE

---

Dans le but d'étendre le microscope NV à balayage à l'imagerie de champs électriques, deux aspects restent limitants et nécessitent d'être modifiés ou améliorés. Je vais discuter de ces deux aspects qui concernent le faible champ magnétique externe appliqué ainsi que l'antenne micro-onde lithographiée.

## Augmentation du champ magnétique externe

La première limitation provient du faible champ magnétique vectoriel généré par les six bobines. Ces bobines, bien que pratiques pour calibrer les angles du centre NV dans la pointe diamant, ne permettent pas de générer un champ magnétique supérieur à 1,5 mT. Par ailleurs, pour cette valeur de champs, ces dernières chauffent de manière importante ce qui rend difficile la réalisation de cartographies. De plus, pour la mesure de champ électrique, il est souhaitable de pouvoir appliquer un champ magnétique perpendiculaire bien plus important. Pour contrer ce problème, je me suis tourné sur l'incorporation d'un aimant permanent sur des platines de translations et de rotations dans le dispositif expérimental. L'objectif est de pouvoir appliquer un champ magnétique à l'aide des différentes translations et rotations de l'ordre de 10 mT au niveau de la pointe en diamant. Pour cela, des simulations sur le champ magnétique généré par un aimant permanent ont été réalisées à l'aide du module python *Magpylib* [323] (<https://magpylib.readthedocs.io/en/latest/>).

Pour répondre à ce critère, j'ai fait varier trois paramètres :

- La taille de l'aimant permanent
- L'orientation de l'aimant permanent
- L'aimantation de l'aimant permanent  $\mathcal{M}_{\text{direction}}$

La première étape consiste à régler la question de la taille de l'aimant. Pour cela, différentes tailles de forme cubique sont considérées :  $1 \times 1 \times 1 \text{ mm}^3$ ,  $3 \times 3 \times 3 \text{ mm}^3$ ,  $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$  et  $8 \times 8 \times 8 \text{ mm}^3$ . Le champ magnétique généré par ces quatre aimants est simulé en fonction de la distance de la pointe en diamant dans le référentiel du laboratoire (caractérisée par la direction  $X$ ). Cette distance suivant la direction  $X$  de l'aimant permanent avec la pointe en diamant est la plus importante et le champ

magnétique généré à la position du centre NV va forcément dépendre de cette distance. Par ailleurs, plus l'aimant est grand, plus le champ magnétique généré est important mais d'un autre côté il devient plus encombrant dans le dispositif expérimental. Il faut donc trouver un compromis et c'est dans ce but que le champ magnétique généré suivant l'axe  $X$  est simulé pour différentes tailles d'aimant pour une aimantation  $\mathcal{M}_X$  (voir Figure E.1). Comme attendu, plus l'aimant est petit, plus il est possible de le rapprocher de la pointe en diamant. Cependant, dans le cas de la dimension  $1 \times 1 \times 1 \text{ mm}^3$ , le rapprocher ne compense pas le fait qu'il ne génère pas assez de champ magnétique. En ce qui concerne l'aimant de taille  $8 \times 8 \times 8 \text{ mm}^3$ , ce dernier permet d'avoir un grand champ magnétique mais sa dimension rend difficile tout déplacement par la suite suivant les deux autres directions  $Y$  et  $Z$  ou même pour envisager des rotations sur lui-même. En effet, dans le dispositif expérimental décrit dans l'Annexe A, l'échantillon et la pointe sont tout deux sur des tours de positionneurs et de scanners et l'acheminement de l'aimant permanent doit se faire dans cette zone pour espérer un champ magnétique suffisamment grand au niveau du centre NV. Il est alors plus intéressant d'avoir un aimant permanent un peu moins encombrant qui génère un champ magnétique un peu plus faible mais que l'on peut plus aisément déplacer dans les trois directions de l'espace et tourner autour de lui-même. C'est pour cela que j'ai choisi l'aimant de  $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$  qui semble le meilleur compromis. Pour cette taille de cube, on estime pouvoir l'approcher à une distance de  $d_X = 12 - 15 \text{ mm}$ , ce qui se traduit par un champ magnétique généré allant de  $B_{\text{aimant}} = 8,4 - 16,3 \text{ mT}$  (voir Figure E.1).

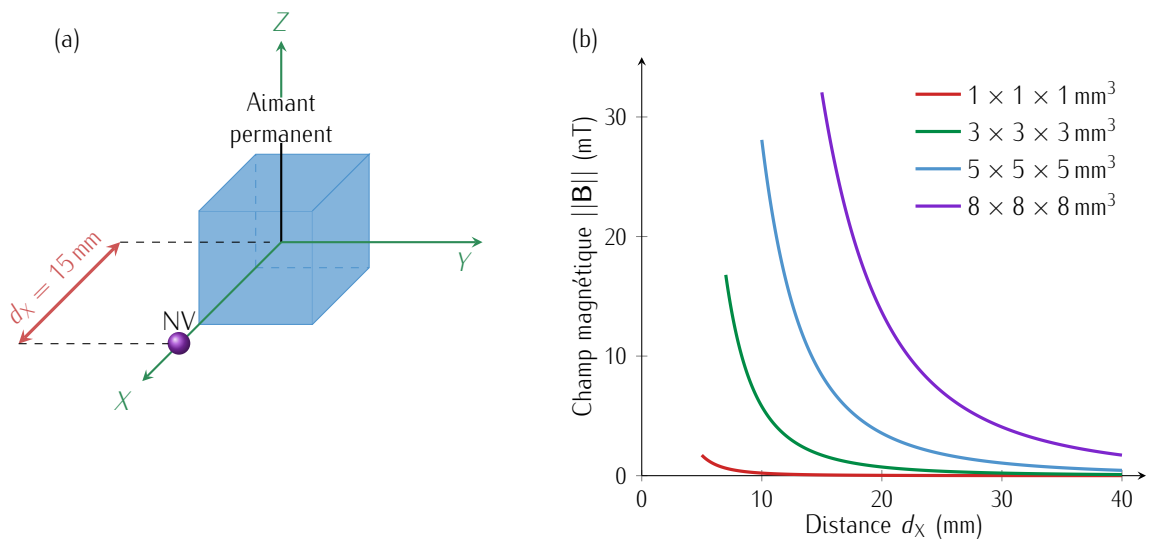


FIGURE E.1 – (a) Schéma représentant l'aimant permanent (cube en bleu) et la position où le champ magnétique est calculé (point en violet). (b) Évolution du champ magnétique généré pour différentes tailles d'aimant cubique en fonction de la distance  $d_X$ . Dans ce cas précis,  $d_Y = 0$  et  $d_Z = 0$ . L'aimantation de l'aimant utilisé est suivant  $\mathcal{M}_X$ .

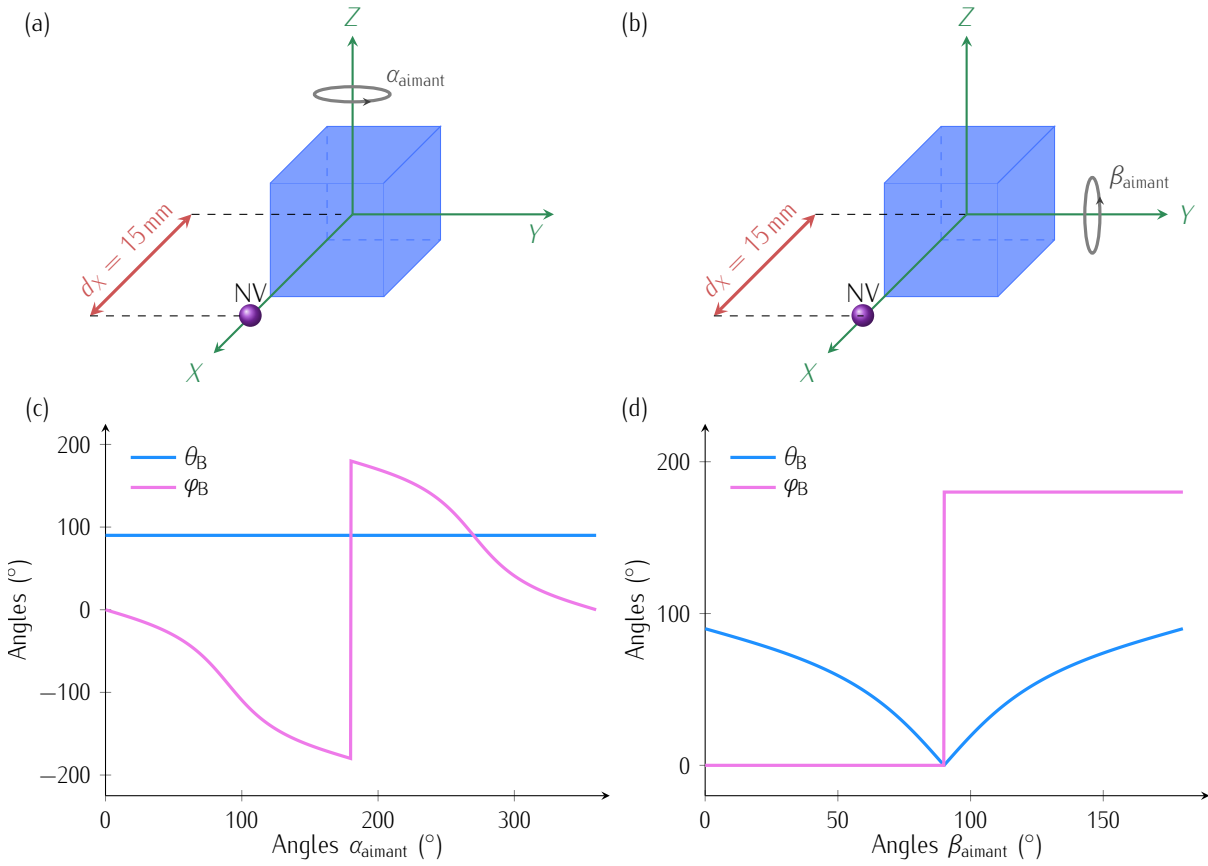


FIGURE E.2 – Définition des angles  $\alpha_{\text{aimant}}$  et  $\beta_{\text{aimant}}$  qui correspondent respectivement aux rotations autour des axes Z (a) et Y (b). (c) Évolution des angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  en fonction de la rotation  $\alpha_{\text{aimant}}$  correspondant à la rotation autour de l'axe Z. Dans le dispositif expérimental, on estime pouvoir faire tourner le cube autour de Z sur  $360^\circ$ . (d) Évolution des angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  en fonction de la rotation  $\beta_{\text{aimant}}$  correspondant à la rotation autour de l'axe Y. Dans le dispositif expérimental, on estime pouvoir faire tourner le cube autour de Y sur  $180^\circ$ . Dans les deux cas la distance  $d_x = 15 \text{ mm}$  avec une aimantation suivant  $\mathcal{M}_X$ .

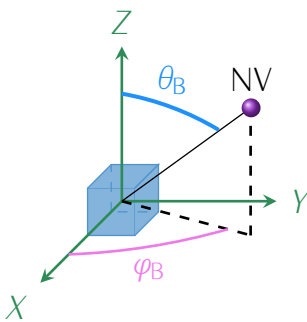


FIGURE E.3 – Schéma représentant les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  entre le champ magnétique et le centre NV.

Pour cet aimant de taille  $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ , d'aimantation  $\mathcal{M}_X$  situé à une distance  $d_x = 15 \text{ mm}$ , on va maintenant simuler les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  correspondant aux angles entre le champ magnétique et le centre NV (voir Figure E.3) qu'il est possible d'obtenir lorsque l'on fait une rotation du cube autour de l'axe Z (rotation d'un angle  $\alpha_{\text{aimant}}$ ) puis ensuite autour de l'axe Y (rotation d'un angle  $\beta_{\text{aimant}}$ ) (voir Figure E.2 (a)-(b)). Pour chaque angle  $\alpha_{\text{aimant}}$  et  $\beta_{\text{aimant}}$ , les composantes du champ magnétique  $B_X$ ,  $B_Y$  et  $B_Z$  sont calculées et on peut alors déterminer  $\theta_B = \arccos\left(\frac{B_Z}{\|\mathbf{B}_{\text{aimant}}\|}\right)$  et  $\varphi_B = \arctan2\left(\frac{B_Y}{B_X}\right)$ . Pour prendre en compte les possibilités dans le dispositif expérimental, l'angle  $\alpha_{\text{aimant}}$  est varié de  $0 - 360^\circ$  tandis que l'angle  $\beta_{\text{aimant}}$  est varié entre  $0 - 180^\circ$ . On mesure alors les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  en prenant en compte ces limitations (voir Figure E.2 (c)-(d)). Il est possible, en faisant une

rotation autour de l'axe  $Z$ , de faire varier l'angle  $\varphi_B$  indépendamment de l'angle  $\theta_B$  tout en conservant la possibilité d'avoir des angles  $\varphi_B$  entre  $-180^\circ$  et  $180^\circ$ . Par ailleurs, dans un second temps, lors d'une rotation autour de l'axe  $Y$ , bien que l'angle  $\varphi_B$  ne puisse prendre que deux valeurs ( $0^\circ$  ou  $180^\circ$ ), ce degré de liberté permet de modifier la valeur de l'angle  $\theta_B$  entre  $0^\circ$  et  $90^\circ$ , ce qui n'était pas possible avec la rotation autour de l'axe  $Z$ .

Pour finir, le dernier degré de liberté réside dans le choix de la direction de l'aimantation de l'aimant et son impact sur les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  est observé. Pour cela, le cube de  $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$  placé à une distance  $d_X = 15 \text{ mm}$  fixe est déplacé suivant les directions  $Y$  et  $Z$  et les angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  sont mesurés pour les trois aimantations  $\mathcal{M}_X$ ,  $\mathcal{M}_Y$  et  $\mathcal{M}_Z$  (voir Figure E.4). En se déplaçant suivant les directions  $Y$  et  $Z$  ainsi que par la modification de l'orientation de l'aimant, on peut d'accéder à une certaine plage d'angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  au niveau de la position du centre NV. En couplant cela aux rotations suivant les axes  $Z$  et  $Y$  ainsi que la possibilité de se déplacer en  $X$ ,  $Y$  et  $Z$ , il semble possible d'aligner un champ magnétique perpendiculaire à l'axe de quantification du centre NV bien plus intense que celui généré par les bobines. Il reste cependant à déterminer un algorithme permettant de faire cet alignement de façon efficace.

### Mise en place d'une excitation micro-onde externe

La seconde limitation concerne l'excitation micro-onde. En effet, actuellement, une ligne en or est directement lithographiée sur l'échantillon ce qui permet de réaliser des spectres de résonance magnétique sur les structures d'intérêt. Cependant, ce principe, bien qu'efficace ajoute un problème majeur dans la réalisation d'une cartographie du champ électrique. En effet, dans le protocole de mesure, il est nécessaire d'utiliser des impulsions micro-onde de durée  $T_{\frac{\pi}{2}}$  pour mettre le spin dans une superposition quantique d'état mais aussi une impulsion micro-onde de durée  $T_\pi$  pour renverser le spin. Or la durée de ces impulsions est fixée par la puissance micro-onde au niveau du centre NV, qui va varier au cours d'une cartographie si la source est fixe à la surface de l'échantillon. Il sera nécessaire de réaliser la mesure de l'oscillation de Rabi pour chaque position ce qui rend compliqué et ralentit l'acquisition d'une carte de champ électrique. Pour contrer cette limitation, je propose d'ajouter, dans le dispositif expérimental, une excitation micro-onde externe dont la position est fixe par rapport à la pointe. Dans ce cas, la calibration de l'impulsion micro-onde nécessaire au protocole de mesure n'est réalisée qu'une seule fois au début de la cartographie puisqu'elle ne va pas évoluer en fonction de la position du centre NV sur l'échantillon. Cependant, cela nécessite d'utiliser au-dessous de notre objectif de microscope une antenne micro-onde assez proche du centre NV pour obtenir une excitation suffisante. Pour cela, on va remplacer l'objectif de microscope afin d'avoir une distance de travail de  $3 \text{ mm}$  au lieu de  $1 \text{ mm}$  actuellement.

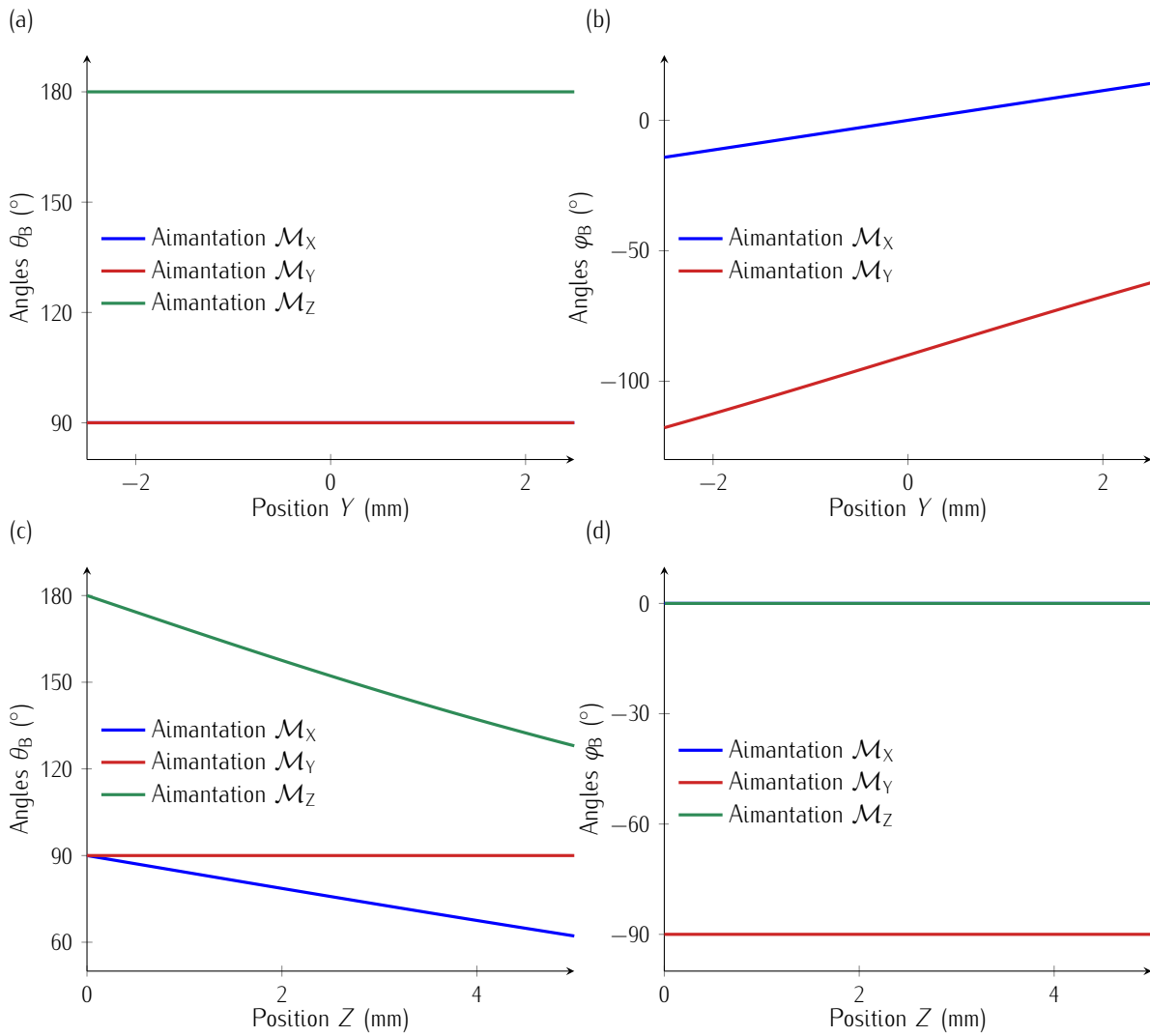


FIGURE E.4 – (a)-(b) Évolution des angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  en fonction de la variation de la position de l'aimant suivant X de pour différentes l'aimantation  $\mathcal{M}$ . Dans le cas d'une aimantation  $\mathcal{M}_Z$ , l'angle  $\varphi_B$  n'est pas défini. (c)-(d) Évolution des angles  $\theta_B$  et  $\varphi_B$  en fonction de la variation de la position de l'aimant suivant Z de pour différentes l'aimantation  $\mathcal{M}$ . Dans les deux cas la distance  $d_X$  utilisée pour les simulations est de 15 mm.





# BIBLIOGRAPHIE

---

- [1] A. G. J. MACFARLANE, J. P. DOWLING et G. J. MILBURN. [Quantum technology: the second quantum revolution](#). *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 361, 1655–1674 (2003).
- [2] C. L. DEGEN, F. REINHARD et P. CAPPELLARO. [Quantum sensing](#). *Reviews of Modern Physics* 89, 035002 (2017).
- [3] E. DIAMANTI, H.-K. LO, B. QI et Z. YUAN. [Practical challenges in quantum key distribution](#). *npj Quantum Information* 2, 1–12 (2016).
- [4] Y.-A. CHEN et al. [An integrated space-to-ground quantum communication network over 4,600 kilometres](#). *Nature* 589, 214–219 (2021).
- [5] I. M. GEORGESCU, S. ASHHAB et F. NORI. [Quantum simulation](#). *Reviews of Modern Physics* 86, 153–185 (2014).
- [6] T. D. LADD, F. JELEZKO, R. LAFLAMME, Y. NAKAMURA, C. MONROE et J. L. O'BRIEN. [Quantum computers](#). *Nature* 464, 45–53 (2010).
- [7] H. B. DANG, A. C. MALOOF et M. V. ROMALIS. [Ultrahigh sensitivity magnetic field and magnetization measurements with an atomic magnetometer](#). *Applied Physics Letters* 97, 151110 (2010).
- [8] M. V. BALABAS, T. KARULANOV, M. P. LEDBETTER et D. BUDKER. [Polarized Alkali-Metal Vapor with Minute-Long Transverse Spin-Relaxation Time](#). *Physical Review Letters* 105, 070801 (2010).
- [9] T. L. GUSTAVSON, P. BOUYER et M. A. KASEVICH. [Precision Rotation Measurements with an Atom Interferometer Gyroscope](#). *Physical Review Letters* 78, 2046–2049 (1997).
- [10] M. KASEVICH et S. CHU. [Measurement of the gravitational acceleration of an atom with a light-pulse atom interferometer](#). *Applied Physics B* 54, 321–332 (1992).
- [11] V. MÉNORET, P. VERMEULEN, N. LE MOIGNE, S. BONVALOT, P. BOUYER, A. LANDRAGIN et B. DESRUELLE. [Gravity measurements below  \$10^{-9}\$  g with a transportable absolute quantum gravimeter](#). *Scientific Reports* 8, 12300 (2018).
- [12] R. MAIWALD, D. LEIBFRIED, J. BRITTON, J. C. BERGQUIST, G. LEUCHS et D. J. WINELAND. [Stylus ion trap for enhanced access and sensing](#). *Nature Physics* 5, 551–554 (2009).

- [13] M. J. BIERCUK, H. UYS, J. W. BRITTON, A. P. VANDEVENDER et J. J. BOLLINGER. [Ultrasensitive detection of force and displacement using trapped ions](#). *Nature Nanotechnology* 5, 646–650 (2010).
- [14] I. BAUMGART, J.-M. CAI, A. RETZKER, M. B. PLENIO et Ch. WUNDERLICH. [Ultrasensitive Magnetometer using a Single Atom](#). *Physical Review Letters* 116, 240801 (2016).
- [15] M. BROWNNUTT, M. KUMPH, P. RABL et R. BLATT. [Ion-trap measurements of electric-field noise near surfaces](#). *Reviews of Modern Physics* 87, 1419–1482 (2015).
- [16] A. FACON, E.-K. DIETSCHÉ, D. GROSSO, S. HAROCHE, J.-M. RAIMOND, M. BRUNE et S. GLEYZES. [A sensitive electrometer based on a Rydberg atom in a Schrödinger-cat state](#). *Nature* 535, 262–265 (2016).
- [17] S. KUMAR, H. FAN, H. KÜBLER, A. J. JAHANGIRI et J. P. SHAFFER. [Rydberg-atom based radio-frequency electrometry using frequency modulation spectroscopy in room temperature vapor cells](#). *Optics Express* 25, 8625–8637 (2017).
- [18] M. SIMMONDS, W. FERTIG et R. GIFFARD. [Performance of a resonant input SQUID amplifier system](#). *IEEE Transactions on Magnetics* 15, 478–481 (1979).
- [19] A. FINKLER, Y. SEGEV, Y. MYASOEDOV, M. L. RAPPAPORT, L. NE'EMAN, D. VASYUKOV, E. ZELDOV, M. E. HUBER, J. MARTIN et A. YACOBY. [Self-Aligned Nanoscale SQUID on a Tip](#). *Nano Letters* 10, 1046–1049 (2010).
- [20] A. FINKLER, D. VASYUKOV, Y. SEGEV, L. NE'EMAN, E. O. LACHMAN, M. L. RAPPAPORT, Y. MYASOEDOV, E. ZELDOV et M. E. HUBER. [Scanning superconducting quantum interference device on a tip for magnetic imaging of nanoscale phenomena](#). *Review of Scientific Instruments* 83, 073702 (2012).
- [21] D. VASYUKOV, Y. ANAHORY, L. EMBON, D. HALBERTAL, J. CUPPENS, L. NEEMAN, A. FINKLER, Y. SEGEV, Y. MYASOEDOV, M. L. RAPPAPORT, M. E. HUBER et E. ZELDOV. [A scanning superconducting quantum interference device with single electron spin sensitivity](#). *Nature Nanotechnology* 8, 639–644 (2013).
- [22] K. BAGANI, J. SARKAR, A. URI, M. L. RAPPAPORT, M. E. HUBER, E. ZELDOV et Y. MYASOEDOV. [Sputtered Mo<sub>66</sub>Re<sub>34</sub> SQUID-on-Tip for High-Field Magnetic and Thermal Nanoimaging](#). *Physical Review Applied* 12, 044062 (2019).
- [23] D. HALBERTAL, J. CUPPENS, M. B. SHALOM, L. EMBON, N. SHADMI, Y. ANAHORY, H. R. NAREN, J. SARKAR, A. URI, Y. RONEN, Y. MYASOEDOV, L. S. LEVITOV, E. JOSELEVICH, A. K. GEIM et E. ZELDOV. [Nanoscale thermal imaging of dissipation in quantum systems](#). *Nature* 539, 407–410 (2016).

- [24] M. WYSS, K. BAGANI, D. JETTER, E. MARCHIORI, A. VERVELAKI, B. GROSS, J. RIDDERBOS, S. GLIGA, C. SCHÖNENBERGER et M. POGGIO. *Magnetic, thermal, and topographic imaging with a nanometer-scale SQUID-on-cantilever scanning probe*. *Physical Review Applied* 17, 034002 (2022).
- [25] L. DU PREEZ. *Electron paramagnetic resonance and optical investigations of defect centres in diamond*. Thesis. University of the Witwatersrand, Johannesburg, 1965.
- [26] A. GRUBER, A. DRÄBENSTEDT, C. TIETZ, L. FLEURY, J. WRACHTRUP et C. von BORCZYKOWSKI. *Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers*. *Science* 276, 2012–2014 (1997).
- [27] J. R. MAZE, P. L. STANWIX, J. S. HODGES, S. HONG, J. M. TAYLOR, P. CAPPELLARO, L. JIANG, M. V. Gurudev DUTT, E. TOGAN, A. S. ZIBROV, A. YACOBY, R. L. WALSWORTH et M. D. LUKIN. *Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond*. *Nature* 455, 644–647 (2008).
- [28] F. DOLDE, H. FEDDER, M. W. DOHERTY, T. NÖBAUER, F. REMPP, G. BALASUBRAMANIAN, T. WOLF, F. REINHARD, L. C. L. HOLLENBERG, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Electric-field sensing using single diamond spins*. *Nature Physics* 7, 459–463 (2011).
- [29] G. KUCSKO, P. C. MAURER, N. Y. YAO, M. KUBO, H. J. NOH, P. K. LO, H. PARK et M. D. LUKIN. *Nanometre-scale thermometry in a living cell*. *Nature* 500, 54–58 (2013).
- [30] M. W. DOHERTY, V. V. STRUZHUKIN, D. A. SIMPSON, L. P. MCGUINNESS, Y. MENG, A. STACEY, T. J. KARLE, R. J. HEMLEY, N. B. MANSON, L. C. L. HOLLENBERG et S. PRAWER. *Electronic Properties and Metrology Applications of the Diamond NV<sup>-</sup> Center under Pressure*. *Physical Review Letters* 112, 047601 (2014).
- [31] M. ROLLO, A. FINCO, R. TANOS, F. FABRE, T. DEVOLDER, I. ROBERT-PHILIP et V. JACQUES. *Quantitative study of the response of a single NV defect in diamond to magnetic noise*. *Physical Review B* 103, 235418 (2021).
- [32] M. KIM, H. J. MAMIN, M. H. SHERWOOD, K. OHNO, D. D. AWSCHALOM et D. RUGAR. *Decoherence of Near-Surface Nitrogen-Vacancy Centers Due to Electric Field Noise*. *Physical Review Letters* 115, 087602 (2015).
- [33] 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).
- [34] P. MALETINSKY, S. HONG, M. S. GRINOLDS, B. HAUSMANN, M. D. LUKIN, R. L. WALSWORTH, M. LONCAR et A. YACOBY. *A robust scanning diamond sensor for nanoscale imaging with single nitrogen-vacancy centres*. *Nature Nanotechnology* 7, 320–324 (2012).
- [35] M. MUNSCH. *NV magnetometry*. Rapp. tech. Qnami, 2020.

- [36] P. M. KOENRAAD et M. E. FLATTÉ. *Single dopants in semiconductors*. *Nature Materials* 10, 91–100 (2011).
- [37] M. W. DOHERTY, N. B. MANSON, P. DELANEY, F. JELEZKO, J. WRACHTRUP et L. C.L. HOLLENBERG. *The nitrogen-vacancy colour centre in diamond*. *Physics Reports* 528, 1–45 (2013).
- [38] D. A. REDMAN, S. BROWN, R. H. SANDS et S. C. RAND. *Spin dynamics and electronic states of N-V centers in diamond by EPR and four-wave-mixing spectroscopy*. *Physical Review Letters* 67, 3420–3423 (1991).
- [39] 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).
- [40] G. BALASUBRAMANIAN, P. NEUMANN, D. TWITCHEN, M. MARKHAM, R. KOLESOV, N. MIZUOCHI, J. ISOYA, J. ACHARD, J. BECK, J. TISSLER, V. JACQUES, P. R. HEMMER, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond*. *Nature Materials* 8, 383–387 (2009).
- [41] B. M. CHERNOBROD et G. P. BERMAN. *Spin microscope based on optically detected magnetic resonance*. *Journal of Applied Physics* 97, 014903 (2005).
- [42] J. WRACHTRUP, C. von BORCZYKOWSKI, J. BERNARD, M. ORRIT et R. BROWN. *Optical detection of magnetic resonance in a single molecule*. *Nature* 363, 244–245 (1993).
- [43] J. KÖHLER, J. a. J. M. DISSELHORST, M. C. J. M. DONCKERS, E. J. J. GROENEN, J. SCHMIDT et W. E. MOERNER. *Magnetic resonance of a single molecular spin*. *Nature* 363, 242–244 (1993).
- [44] J. M. TAYLOR, P. CAPPELLARO, L. CHILDRESS, L. JIANG, D. BUDKER, P. R. HEMMER, A. YACOBY, R. WALSWORTH et M. D. LUKIN. *High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution*. *Nature Physics* 4, 810–816 (2008).
- [45] G. BALASUBRAMANIAN, I. Y. CHAN, R. KOLESOV, M. AL-HMOUD, J. TISLER, C. SHIN, C. KIM, A. WOJCIK, P. R. HEMMER, A. KRUEGER, T. HANKE, A. LEITENSTORFER, R. BRATSCHITSCH, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions*. *Nature* 455, 648–651 (2008).
- [46] L. RONDIN, J.-P. TETIENNE, P. SPINICELLI, C. DAL SAVIO, K. KARRAI, G. DANTELLE, A. THIAVILLE, S. ROHART, J.-F. ROCH et V. JACQUES. *Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer*. *Applied Physics Letters* 100, 153118 (2012).
- [47] L. THIEL, Z. WANG, M. A. TSCHUDIN, D. ROHNER, I. GUTIÉRREZ-LEZAMA, N. UBRIG, M. GIBERTINI, E. GIANNINI, A. F. MORPURGO et P. MALETINSKY. *Probing magnetism in 2D materials at the nanoscale with single-spin microscopy*. *Science* 364, 973–976 (2019).
- [48] F. FABRE, A. FINCO, A. PURBAWATI, A. HADJ-AZZEM, N. ROUGEMAILLE, J. CORAUX, I. PHILIP et V. JACQUES. *Characterization of room-temperature in-plane magnetization in thin flakes of CrTe<sub>2</sub> with a single-spin magnetometer*. *Physical Review Materials* 5, 034008 (2021).

- [49] Q.-C. SUN, T. SONG, E. ANDERSON, A. BRUNNER, J. FÖRSTER, T. SHALOMAYEVA, T. TANIGUCHI, K. WATANABE, J. GRÄFE, R. STÖHR, X. XU et J. WRACHTRUP. *Magnetic domains and domain wall pinning in atomically thin CrBr<sub>3</sub> revealed by nanoscale imaging*. *Nature Communications* 12, 1989 (2021).
- [50] K. G. RANA, A. FINCO, F. FABRE, S. CHOUAIEB, A. HAYKAL, L. D. BUDA-PREJBEANU, O. FRUCHART, S. LE DENMAT, P. DAVID, M. BELMEGUENAI, T. DENNEULIN, R. E. DUNIN-BORKOWSKI, G. GAUDIN, V. JACQUES et O. BOULLE. *Room-Temperature Skyrmions at Zero Field in Exchange-Biased Ultrathin Films*. *Physical Review Applied* 13, 044079 (2020).
- [51] I. GROSS, W. AKHTAR, V. GARCIA, L. J. MARTÍNEZ, S. CHOUAIEB, K. GARCIA, C. CARRÉTÉRO, A. BARTHÉLÉMY, P. APPEL, P. MALETINSKY, J.-V. KIM, J. Y. CHAULEAU, N. JAOUEN, M. VIRET, M. BIBES, S. FUSIL et V. JACQUES. *Real-space imaging of non-collinear antiferromagnetic order with a single-spin magnetometer*. *Nature* 549, 252–256 (2017).
- [52] P. APPEL, B. J. SHIELDS, T. KOSUB, N. HEDRICH, R. HÜBNER, J. FASSBENDER, D. MAKAROV et P. MALETINSKY. *Nanomagnetism of Magnetoelectric Granular Thin-Film Antiferromagnets*. *Nano Letters* 19, 1682–1687 (2019).
- [53] A. HAYKAL, J. FISCHER, W. AKHTAR, J.-Y. CHAULEAU, D. SANDO, A. FINCO, F. GODEL, Y. A. BIRKHÖLZER, C. CARRÉTÉRO, N. JAOUEN, M. BIBES, M. VIRET, S. FUSIL, V. JACQUES et V. GARCIA. *Antiferromagnetic textures in BiFeO<sub>3</sub> controlled by strain and electric field*. *Nature Communications* 11, 1704 (2020).
- [54] J.-Y. CHAULEAU, T. CHIRAC, S. FUSIL, V. GARCIA, W. AKHTAR, J. TRANCHIDA, P. THIBAudeau, I. GROSS, C. BLOUZON, A. FINCO, M. BIBES, B. DKHIL, D. D. KHALYAVIN, P. MANUEL, V. JACQUES, N. JAOUEN et M. VIRET. *Electric and antiferromagnetic chiral textures at multiferroic domain walls*. *Nature Materials* 19, 386–390 (2020).
- [55] N. HEDRICH, K. WAGNER, O. V. PYLYPOVSKYI, B. J. SHIELDS, T. KOSUB, D. D. SHEKA, D. MAKAROV et P. MALETINSKY. *Nanoscale mechanics of antiferromagnetic domain walls*. *Nature Physics* 17, 574–577 (2021).
- [56] M. S. WÖRNLE, P. WELTER, M. GIRALDO, T. LOTTERMOSER, M. FIEBIG, P. GAMBARDILLA et C. L. DEGEN. *Coexistence of Bloch and Néel walls in a collinear antiferromagnet*. *Physical Review B* 103, 094426 (2021).
- [57] Aurore FINCO, Angela HAYKAL, Stéphane FUSIL, Pawan KUMAR, Pauline DUFOUR, Anne FORGET, Dorothée COLSON, Jean-Yves CHAULEAU, Michel VIRET, Nicolas JAOUEN, Vincent GARCIA et Vincent JACQUES. *Imaging Topological Defects in a Noncollinear Antiferromagnet*. *Physical Review Letters* 128, 187201 (2022).

- [58] M. J. H. KU, T. X. ZHOU, Q. LI, Y. J. SHIN, J. K. SHI, C. BURCH, L. E. ANDERSON, A. T. PIERCE, Y. XIE, A. HAMO, U. VOOL, H. ZHANG, F. CASOLA, T. TANIGUCHI, K. WATANABE, M. M. FOGLER, P. KIM, A. YACOBY et R. L. WALSWORTH. *Imaging viscous flow of the Dirac fluid in graphene*. *Nature* 583, 537–541 (2020).
- [59] M. L. PALM, W. S. HUXTER, P. WELTER, S. ERNST, P. J. SCHEIDEGGER, S. DIESCH, K. CHANG, P. RICKHAUS, T. TANIGUCHI, K. WATANABE, K. ENSSLIN et C. L. DEGEN. *Imaging of sub- $\mu$ A currents in bilayer graphene using a scanning diamond magnetometer*. *Physical Review Applied* 17, 054008 (2022).
- [60] A. M. ZAITSEV. *Optical Properties of Diamond : A Data Handbook*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [61] G. DAVIES. *Vibronic spectra in diamond*. *Journal of Physics C : Solid State Physics* 7, 3797–3809 (1974).
- [62] C. KURTSIEFER, S. MAYER, P. ZARDA et H. WEINFURTER. *Stable Solid-State Source of Single Photons*. *Physical Review Letters* 85, 290–293 (2000).
- [63] A. BEVERATOS, R. BROURI, T. GACOIN, A. VILLING, J.-P. POIZAT et P. GRANGIER. *Single Photon Quantum Cryptography*. *Physical Review Letters* 89, 187901 (2002).
- [64] R. ALLÉAUME, F. TREUSSART, G. MESSIN, Y. DUMEIGE, J.-F. ROCH, A. BEVERATOS, R. BROURI-TUALLE, J.-P. POIZAT et P. GRANGIER. *Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source*. *New Journal of Physics* 6, 92–92 (2004).
- [65] Y.-R. CHANG, H.-Y. LEE, K. CHEN, C.-C. CHANG, D.-S. TSAI, C.-C. FU, T.-S. LIM, Y.-K. TZENG, C.-Y. FANG, C.-C. HAN, H.-C. CHANG et W. FANN. *Mass production and dynamic imaging of fluorescent nanodiamonds*. *Nature Nanotechnology* 3, 284–288 (2008).
- [66] N. MOHAN, C.-S. CHEN, H.-H. HSIEH, Y.-C. WU et H.-C. CHANG. *In Vivo Imaging and Toxicity Assessments of Fluorescent Nanodiamonds in *Caenorhabditis elegans**. *Nano Letters* 10, 3692–3699 (2010).
- [67] A. ALHADDAD, M. ADAM, J. BOTSOA, G. DANTELLE, S. PERRUCHAS, T. GACOIN, C. MANSUY, S. LAVIELLE, C. MALVY, F. TREUSSART et J.-R. BERTRAND. *Nanodiamond as a Vector for siRNA Delivery to Ewing Sarcoma Cells*. *Small* 7, 3087–3095 (2011).
- [68] A. DURAND. *Défauts uniques optiquement actif dans les semi-conducteurs pour les technologies quantiques : Du centre NV du diamant aux défauts uniques du silicium*. Thèse de doctorat. Université de Montpellier, France, 2021.
- [69] M. W. DOHERTY, N. B. MANSON, P. DELANEY et L. C. L. HOLLENBERG. *The negatively charged nitrogen-vacancy centre in diamond: the electronic solution*. *New Journal of Physics* 13, 025019 (2011).

- [70] 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).
- [71] P. DEÁK, B. ARADI, M. KAVIANI, T. FRAUENHEIM et A. GALI. *Formation of NV centers in diamond: A theoretical study based on calculated transitions and migration of nitrogen and vacancy related defects*. *Physical Review B* 89, 075203 (2014).
- [72] A. GALI, M. FYTA et E. KAXIRAS. *Ab initio supercell calculations on nitrogen-vacancy center in diamond: Electronic structure and hyperfine tensors*. *Physical Review B* 77, 155206 (2008).
- [73] J. A. LARSSON et P. DELANEY. *Electronic structure of the nitrogen-vacancy center in diamond from first-principles theory*. *Physical Review B* 77, 165201 (2008).
- [74] F. M. HOSSAIN, M. W. DOHERTY, H. F. WILSON et L. C. L. HOLLENBERG. *Ab Initio Electronic and Optical Properties of the N-V<sup>-</sup> Center in Diamond*. *Physical Review Letters* 101, 226403 (2008).
- [75] A. LENEFF et S. C. RAND. *Electronic structure of the N- V center in diamond: Theory*. *Physical Review B* 53, 13441-13455 (1996).
- [76] P. NEUMANN, R. KOLESOV, V. JACQUES, J. BECK, J. TISLER, A. BATALOV, L. ROGERS, N. B. MANSON, G. BALASUBRAMANIAN, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Excited-state spectroscopy of single NV defects in diamond using optically detected magnetic resonance*. *New Journal of Physics* 11, 013017 (2009).
- [77] G. D. FUCHS, V. V. DOBROVITSKI, R. HANSON, A. BATRA, C. D. WEIS, T. SCHENKEL et D. D. AWSCHALOM. *Excited-State Spectroscopy Using Single Spin Manipulation in Diamond*. *Physical Review Letters* 101, 117601 (2008).
- [78] M. W. DOHERTY, F. DOLDE, H. FEDDER, F. JELEZKO, J. WRACHTRUP, N. B. MANSON et L. C. L. HOLLENBERG. *Theory of the ground-state spin of the NV<sup>-</sup> center in diamond*. *Physical Review B* 85, 205203 (2012).
- [79] N. B. MANSON, J. P. HARRISON et M. J. SELLARS. *Nitrogen-vacancy center in diamond: Model of the electronic structure and associated dynamics*. *Physical Review B* 74, 104303 (2006).
- [80] L. ROBLED0, H. BERNIEN, T. VAN DER SAR et R. HANSON. *Spin dynamics in the optical cycle of single nitrogen-vacancy centres in diamond*. *New Journal of Physics* 13, 025013 (2011).
- [81] J.-P. TETIENNE, L. RONDIN, P. SPINICELLI, M. CHIPAUX, T. DEBUSSCHERT, J.-F. ROCH et V. JACQUES. *Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: an application to qualitative all-optical magnetic imaging*. *New Journal of Physics* 14, 103033 (2012).



- [82] F. DOLDE, M. W. DOHERTY, J. MICHL, I. JAKOBI, B. NAYDENOV, S. PEZZAGNA, J. MEIJER, P. NEUMANN, F. JELEZKO, N. B. MANSON et J. WRACHTRUP. *Nanoscale Detection of a Single Fundamental Charge in Ambient Conditions Using the NV – Center in Diamond*. *Physical Review Letters* 112, 097603 (2014).
- [83] 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).
- [84] X.-D. CHEN, C.-H. DONG, F.-W. SUN, C.-L. ZOU, J.-M. CUI, Z.-F. HAN et G.-C. GUO. *Temperature dependent energy level shifts of nitrogen–vacancy centers in diamond*. *Applied Physics Letters* 99, 161903 (2011).
- [85] D. M. TOYLI, D. J. CHRISTLE, A. ALKAUSKAS, B. B. BUCKLEY, C. G. Van de WALLE et D. D. AWSCHALOM. *Measurement and Control of Single Nitrogen–Vacancy Center Spins above 600 K*. *Physical Review X* 2, 031001 (2012).
- [86] J.-P. TETIENNE. *Un microscope de champ magnétique basé sur le défaut azote–lacune du diamant : réalisation et application à l'étude de couches ferromagnétiques ultraminesces*. Thèse de doctorat. Cachan, Ecole normale supérieure, 2014.
- [87] M. W. DOHERTY, J. MICHL, F. DOLDE, I. JAKOBI, P. NEUMANN, N. B. MANSON et J. WRACHTRUP. *Measuring the defect structure orientation of a single NV<sup>-</sup> centre in diamond*. *New Journal of Physics* 16, 063067 (2014).
- [88] E. VAN OORT et M. GLASBEEK. *Electric–field–induced modulation of spin echoes of N–V centers in diamond*. *Chemical Physics Letters* 168, 529–532 (1990).
- [89] T. MITTIGA, S. HSIEH, C. ZU, B. KOBRIN, F. MACHADO, P. BHATTACHARYYA, N. Z. RUI, A. JARMOLA, S. CHOI, D. BUDKER et N. Y. YAO. *Imaging the Local Charge Environment of Nitrogen–Vacancy Centers in Diamond*. *Physical Review Letters* 121, 246402 (2018).
- [90] J. A. WEIL et J. R. BOLTON. *Electron paramagnetic resonance : elementary theory and practical applications*. 2nd ed. Hoboken, N.J : Wiley–Interscience, 2007.
- [91] B. SMELTZER, J. MCINTYRE et L. CHILDRESS. *Robust control of individual nuclear spins in diamond*. *Physical Review A* 80, 050302 (2009).
- [92] A. JARMOLA, V. M. ACOSTA, K. JENSEN, S. CHEMERISOV et D. BUDKER. *Temperature– and Magnetic–Field–Dependent Longitudinal Spin Relaxation in Nitrogen–Vacancy Ensembles in Diamond*. *Physical Review Letters* 108, 197601 (2012).
- [93] R. HANSON, V. V. DOBROVITSKI, A. E. FEIGUIN, O. GWAT et D. D. AWSCHALOM. *Coherent Dynamics of a Single Spin Interacting with an Adjustable Spin Bath*. *Science* 320, 352–355 (2008).

- [94] N. MIZUOCHI, P. NEUMANN, F. REMPP, J. BECK, V. JACQUES, P. SIYUSHEV, K. NAKAMURA, D. J. TWITCHEN, H. WATANABE, S. YAMASAKI, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Coherence of single spins coupled to a nuclear spin bath of varying density*. *Physical Review B* 80, 041201 (2009).
- [95] J. R. MAZE, A. DRÉAU, V. WASELOWSKI, H. DUARTE, J.-F. ROCH et V. JACQUES. *Free induction decay of single spins in diamond*. *New Journal of Physics* 14, 103041 (2012).
- [96] P. C. MAURER, G. KUCSKO, C. LATTA, L. JIANG, N. Y. YAO, S. D. BENNETT, F. PASTAWSKI, D. HUNGER, N. CHISHOLM, M. MARKHAM, D. J. TWITCHEN, J. I. CIRAC et M. D. LUKIN. *Room-Temperature Quantum Bit Memory Exceeding One Second*. *Science* 336, 1283–1286 (2012).
- [97] L. VIOLA et S. LLOYD. *Dynamical suppression of decoherence in two-state quantum systems*. *Physical Review A* 58, 2733–2744 (1998).
- [98] L. VIOLA, E. KNILL et S. LLOYD. *Dynamical Decoupling of Open Quantum Systems*. *Physical Review Letters* 82, 2417–2421 (1999).
- [99] W. YANG, Z.-Y. WANG et R.-B. LIU. *Preserving qubit coherence by dynamical decoupling*. *Frontiers of Physics* 6, 2–14 (2011).
- [100] E. L. HAHN. *Spin Echoes*. *Physical Review* 80, 580–594 (1950).
- [101] N. ZHAO, S.-W. HO et R.-B. LIU. *Decoherence and dynamical decoupling control of nitrogen vacancy center electron spins in nuclear spin baths*. *Physical Review B* 85, 115303 (2012).
- [102] L. CHILDRESS, M. V. GURUDEV DUTT, J. M. TAYLOR, A. S. ZIBROV, F. JELEZKO, J. WRACHTRUP, P. R. HEMMER et M. D. LUKIN. *Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond*. *Science* 314, 281–285 (2006).
- [103] C. A. RYAN, J. S. HODGES et D. G. CORY. *Robust Decoupling Techniques to Extend Quantum Coherence in Diamond*. *Physical Review Letters* 105, 200402 (2010).
- [104] G. de LANGE, D. RISTÈ, V. V. DOBROVITSKI et R. HANSON. *Single-Spin Magnetometry with Multipulse Sensing Sequences*. *Physical Review Letters* 106, 080802 (2011).
- [105] B. NAYDENOV, F. DOLDE, L. T. HALL, C. SHIN, H. FEDDER, L. C. L. HOLLENBERG, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. *Dynamical decoupling of a single-electron spin at room temperature*. *Physical Review B* 83, 081201 (2011).
- [106] N. BAR-GILL, L. M. PHAM, A. JARMOLA, D. BUDKER et R. L. WALSWORTH. *Solid-state electronic spin coherence time approaching one second*. *Nature Communications* 4, 1743 (2013).
- [107] A. FARAON, P. E. BARCLAY, C. SANTORI, K.-M. C. FU et R. G. BEAUSOLEIL. *Resonant enhancement of the zero-phonon emission from a colour centre in a diamond cavity*. *Nature Photonics* 5, 301–305 (2011).

- [108] J. P. HADDEN, J. P. HARRISON, A. C. STANLEY-CLARKE, L. MARSEGLIA, Y.-L. D. HO, B. R. PATTON, J. L. O'BRIEN et J. G. RARITY. **Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses.** *Applied Physics Letters* 97, 241901 (2010).
- [109] L. MARSEGLIA, J. P. HADDEN, A. C. STANLEY-CLARKE, J. P. HARRISON, B. PATTON, Y.-L. D. HO, B. NAYDENOV, F. JELEZKO, J. MEIJER, P. R. DOLAN, J. M. SMITH, J. G. RARITY et J. L. O'BRIEN. **Nanofabricated solid immersion lenses registered to single emitters in diamond.** *Applied Physics Letters* 98, 133107 (2011).
- [110] T. SCHRÖDER, F. GÄDEKE, M. Julian BANHOLZER et O. BENSON. **Ultrabright and efficient single-photon generation based on nitrogen-vacancy centres in nanodiamonds on a solid immersion lens.** *New Journal of Physics* 13, 055017 (2011).
- [111] T. M. BABINEC, B. J. M. HAUSMANN, M. KHAN, Y. ZHANG, J. R. MAZE, P. R. HEMMER et M. LONČAR. **A diamond nanowire single-photon source.** *Nature Nanotechnology* 5, 195–199 (2010).
- [112] E. NEU, P. APPEL, M. GANZHORN, J. MIGUEL-SÁNCHEZ, M. LESIK, V. MILLE, V. JACQUES, A. TALLAIRE, J. ACHARD et P. MALETINSKY. **Photonic nano-structures on (111)-oriented diamond.** *Applied Physics Letters* 104, 153108 (2014).
- [113] S. A. MOMENZADEH, R. J. STÖHR, F. Favaro de OLIVEIRA, A. BRUNNER, A. DENISENKO, S. YANG, F. REINHARD et J. WRACHTRUP. **Nanoengineered Diamond Waveguide as a Robust Bright Platform for Nanomagnetometry Using Shallow Nitrogen Vacancy Centers.** *Nano Letters* 15, 165–169 (2015).
- [114] A. DRÉAU, M. LESIK, L. RONDIN, P. SPINICELLI, O. ARCIZET, J.-F. ROCH et V. JACQUES. **Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity.** *Physical Review B* 84, 195204 (2011).
- [115] L. M. PHAM, N. BAR-GILL, C. BELTHANGADY, D. LE SAGE, P. CAPPELLARO, M. D. LUKIN, A. YACOBY et R. L. WALSWORTH. **Enhanced solid-state multispin metrology using dynamical decoupling.** *Physical Review B* 86, 045214 (2012).
- [116] J. F. BARRY, J. M. SCHLOSS, E. BAUCH, M. J. TURNER, C. A. HART, L. M. PHAM et R. L. WALSWORTH. **Sensitivity optimization for NV-diamond magnetometry.** *Reviews of Modern Physics* 92, 015004 (2020).
- [117] D. M. TOYLI, C. F. de las CASAS, 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, 8417–8421 (2013).

- [118] J. WANG, F. FENG, J. ZHANG, J. CHEN, Z. ZHENG, L. GUO, W. ZHANG, X. SONG, G. GUO, L. FAN, C. ZOU, L. LOU, W. ZHU et G. WANG. [High-sensitivity temperature sensing using an implanted single nitrogen-vacancy center array in diamond](#). *Physical Review B* 91, 155404 (2015).
- [119] S. STEINERT, F. DOLDE, P. NEUMANN, A. AIRD, B. NAYDENOV, G. BALASUBRAMANIAN, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. [High sensitivity magnetic imaging using an array of spins in diamond](#). *Review of Scientific Instruments* 81, 043705 (2010).
- [120] L. M. PHAM, D. Le SAGE, P. L. STANWIX, T. K. YEUNG, D. GLENN, A. TRIFONOV, P. CAPPELLARO, P. R. HEMMER, M. D. LUKIN, H. PARK, A. YACOBY et R. L. WALSWORTH. [Magnetic field imaging with nitrogen-vacancy ensembles](#). *New Journal of Physics* 13, 045021 (2011).
- [121] D. LE SAGE, K. ARAI, D. R. GLENN, S. J. DEVIENCE, L. M. PHAM, L. RAHN-LEE, M. D. LUKIN, A. YACOBY, A. KOMELI et R. L. WALSWORTH. [Optical magnetic imaging of living cells](#). *Nature* 496, 486-489 (2013).
- [122] A. NOWODZINSKI, M. CHIPAUX, L. TORAILLE, V. JACQUES, J. F. ROCH et T. DEBUISSCHERT. [Nitrogen-Vacancy centers in diamond for current imaging at the redistributive layer level of Integrated Circuits](#). *Microelectronics Reliability*. Proceedings of the 26th European Symposium on Reliability of Electron Devices, Failure Physics and Analysis 55, 1549-1553 (2015).
- [123] D. A. SIMPSON, J.-P. TETIENNE, J. M. MCCOEY, K. GANESAN, L. T. HALL, S. PETROU, R. E. SCHOLTEN et L. C. L. HOLLENBERG. [Magneto-optical imaging of thin magnetic films using spins in diamond](#). *Scientific Reports* 6, 22797 (2016).
- [124] J.-P. TETIENNE, N. DONTCHUK, D. A. BROADWAY, A. STACEY, D. A. SIMPSON et L. C. L. HOLLENBERG. [Quantum imaging of current flow in graphene](#). *Science Advances* 3, e1602429 (2017).
- [125] C. FOY, L. ZHANG, M. E. TRUSHEIM, K. R. BAGNALL, M. WALSH, E. N. WANG et D. R. ENGLUND. [Wide-Field Magnetic Field and Temperature Imaging Using Nanoscale Quantum Sensors](#). *ACS Applied Materials & Interfaces* 12, 26525-26533 (2020).
- [126] S. C. SCHOLTEN, A. J. HEALEY, I. O. ROBERTSON, G. J. ABRAHAMS, D. A. BROADWAY et J.-P. TETIENNE. [Widefield quantum microscopy with nitrogen-vacancy centers in diamond: Strengths, limitations, and prospects](#). *Journal of Applied Physics* 130, 150902 (2021).
- [127] L. RONDIN, J. P. TETIENNE, S. ROHART, A. THIAVILLE, T. HINGANT, P. SPINICELLI, J. F. ROCH et V. JACQUES. [Stray-field imaging of magnetic vortices with a single diamond spin](#). *Nature Communications* 4, 2279 (2013).
- [128] J.-P. TETIENNE, T. HINGANT, L. RONDIN, S. ROHART, A. THIAVILLE, J.-F. ROCH et V. JACQUES. [Quantitative stray field imaging of a magnetic vortex core](#). *Physical Review B* 88, 214408 (2013).

- [129] J.-P. TETIENNE, T. HINGANT, J.-V. KIM, L. HERRERA DIEZ, J.-P. ADAM, K. GARCIA, J.-F. ROCH, S. ROHART, A. THIAVILLE, D. RAVELOSONA et V. JACQUES. *Nanoscale imaging and control of domain-wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope*. *Science* 344, 1366–1369 (2014).
- [130] J.-P. TETIENNE, T. HINGANT, L. J. MARTÍNEZ, S. ROHART, A. THIAVILLE, L. HERRERA DIEZ, K. GARCIA, J.-P. ADAM, J.-V. KIM, J.-F. ROCH, I. M. MIRON, G. GAUDIN, L. VILA, B. OCKER, D. RAVELOSONA et V. JACQUES. *The nature of domain walls in ultrathin ferromagnets revealed by scanning nanomagnetometry*. *Nature Communications* 6, 6733 (2015).
- [131] I. GROSS, L. J. MARTÍNEZ, J.-P. TETIENNE, T. HINGANT, J.-F. ROCH, K. GARCIA, R. SOUCAILLE, J. P. ADAM, J.-V. KIM, S. ROHART, A. THIAVILLE, J. TORREJON, M. HAYASHI et V. JACQUES. *Direct measurement of interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction in X | CoFeB | MgO heterostructures with a scanning NV magnetometer ( X = Ta , TaN , and W )*. *Physical Review B* 94, 064413 (2016).
- [132] P. APPEL, E. NEU, M. GANZHORN, A. BARFUSS, M. BATZER, M. GRATZ, A. TSCHÖPE et P. MALETINSKY. *Fabrication of all diamond scanning probes for nanoscale magnetometry*. *Review of Scientific Instruments* 87, 063703 (2016).
- [133] S. PEZZAGNA, B. NAYDENOV, F. JELEZKO, J. WRACHTRUP et J. MEIJER. *Creation efficiency of nitrogen-vacancy centres in diamond*. *New Journal of Physics* 12, 065017 (2010).
- [134] Loïc RONDIN. *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*. Thèse de doctorat. Cachan, Ecole normale supérieure, 2012.
- [135] Y. YUE et X. WANG. *Nanoscale thermal probing*. *Nano Reviews* 3, 11586 (2012).
- [136] M. MECKLENBURG, W. A. HUBBARD, E. R. WHITE, R. DHALL, S. B. CRONIN, S. ALONI et B. C. REGAN. *Nanoscale temperature mapping in operating microelectronic devices*. *Science* 347, 629–632 (2015).
- [137] G. BAFFOU, H. RIGNEAULT, D. MARGUET et L. JULLIEN. *A critique of methods for temperature imaging in single cells*. *Nature Methods* 11, 899–901 (2014).
- [138] J. WU, T. Y. KWOK, X. LI, W. CAO, Y. WANG, J. HUANG, Y. HONG, D. ZHANG et W. WEN. *Mapping three-dimensional temperature in microfluidic chip*. *Scientific Reports* 3, 3321 (2013).
- [139] D. MAMALUY et X. GAO. *The fundamental downscaling limit of field effect transistors*. *Applied Physics Letters* 106, 193503 (2015).
- [140] D. G. CAHILL, W. K. FORD, K. E. GOODSON, G. D. MAHAN, A. MAJUMDAR, H. J. MARIS, R. MERLIN et S. R. PHILLPOT. *Nanoscale thermal transport*. *Journal of Applied Physics* 93, 793–818 (2003).

- [141] E. POP. Energy dissipation and transport in nanoscale devices. *Nano Research* 3, 147–169 (2010).
- [142] J. KÖLZER, E. OESTERSCHULZE et G. DEBOY. Thermal imaging and measurement techniques for electronic materials and devices. *Microelectronic Engineering* 31, 251–270 (1996).
- [143] E. POP, S. SINHA et K. E. GOODSON. Heat Generation and Transport in Nanometer-Scale Transistors. *Proceedings of the IEEE* 94, 1587–1601 (2006).
- [144] D. VASILESKA, K. RALEVA et S. M. GOODNICK. Modeling heating effects in nanoscale devices: the present and the future. *Journal of Computational Electronics* 7, 66–93 (2008).
- [145] J. S. DONNER, S. A. THOMPSON, M. P. KREUZER, G. BAFFOU et R. QUIDANT. Mapping Intracellular Temperature Using Green Fluorescent Protein. *Nano Letters* 12, 2107–2111 (2012).
- [146] C. FRANCESCHI. Cell proliferation, cell death and aging. *Aging Clinical and Experimental Research* 1, 3–15 (1989).
- [147] H. S. MARSDEN, I. K. CROMBIE et J. H. SUBAK-SHARPE. Control of Protein Synthesis in Herpesvirus-infected Cells: Analysis of the Polypeptides Induced by Wild Type and Sixteen Temperature-sensitive Mutants of HSV strain 17. *Journal of General Virology* 31, 347–372 (1976).
- [148] J. MARTINEZ, I. GEORGOFF, J. MARTINEZ et A. J. LEVINE. Cellular localization and cell cycle regulation by a temperature-sensitive p53 protein. *Genes & Development* 5, 151–159 (1991).
- [149] R. S. SEYMOUR. Biophysics and Physiology of Temperature Regulation in Thermogenic Flowers. *Bioscience Reports* 21, 223–236 (2001).
- [150] E. M. LUCCHETTA, J. H. LEE, L. A. FU, N. H. PATEL et R. F. ISMAGILOV. Dynamics of *Drosophila* embryonic patterning network perturbed in space and time using microfluidics. *Nature* 434, 1134–1138 (2005).
- [151] Y. KAMEI, M. SUZUKI, K. WATANABE, K. FUJIMORI, T. KAWASAKI, T. DEGUCHI, Y. YONEDA, T. TODO, S. TAKAGI, T. FUNATSU et S. YUBA. Infrared laser-mediated gene induction in targeted single cells in vivo. *Nature Methods* 6, 79–81 (2009).
- [152] S. V. KUMAR et P. A. WIGGE. H2A.Z-Containing Nucleosomes Mediate the Thermosensory Response in *Arabidopsis*. *Cell* 140, 136–147 (2010).
- [153] V. M. LAUSCHKE, C. D. TSIARIS, P. FRANÇOIS et A. AULEHLA. Scaling of embryonic patterning based on phase-gradient encoding. *Nature* 493, 101–105 (2013).
- [154] C. GOTA, K. OKABE, T. FUNATSU, Y. HARADA et S. UCHIYAMA. Hydrophilic Fluorescent Nanogel Thermometer for Intracellular Thermometry. *Journal of the American Chemical Society* 131, 2766–2767 (2009).

- [155] K. OKABE, N. INADA, C. GOTA, Y. HARADA, T. FUNATSU et S. UCHIYAMA. **Intracellular temperature mapping with a fluorescent polymeric thermometer and fluorescence lifetime imaging microscopy.** *Nature Communications* 3, 705 (2012).
- [156] J. B. WEAVER. **Hot nanoparticles light up cancer.** *Nature Nanotechnology* 5, 630-631 (2010).
- [157] D. P. O'NEAL, L. R. HIRSCH, N. J. HALAS, J. D. PAYNE et J. L. WEST. **Photo-thermal tumor ablation in mice using near infrared-absorbing nanoparticles.** *Cancer Letters* 209, 171-176 (2004).
- [158] A. SCHROEDER, D. A. HELLER, M. M. WINSLOW, J. E. DAHLMAN, G. W. PRATT, R. LANGER, T. JACKS et D. G. ANDERSON. **Treating metastatic cancer with nanotechnology.** *Nature Reviews Cancer* 12, 39-50 (2012).
- [159] H. NOROUZI, K. KHOSHGARD et F. AKBARZADEH. **In vitro outlook of gold nanoparticles in photo-thermal therapy: a literature review.** *Lasers in Medical Science* 33, 917-926 (2018).
- [160] C.-W. HSIAO, E.-Y. CHUANG, H.-L. CHEN, D. WAN, C. KORUPALLI, Z.-X. LIAO, Y.-L. CHIU, W.-T. CHIA, K.-J. LIN et H.-W. SUNG. **Photothermal tumor ablation in mice with repeated therapy sessions using NIR-absorbing micellar hydrogels formed in situ.** *Biomaterials* 56, 26-35 (2015).
- [161] Q. CHEN, L. XU, C. LIANG, C. WANG, R. PENG et Z. LIU. **Photothermal therapy with immune-adjutant nanoparticles together with checkpoint blockade for effective cancer immunotherapy.** *Nature Communications* 7, 13193 (2016).
- [162] C. ZHANG, W. BU, D. NI, C. ZUO, C. CHENG, Q. LI, L. ZHANG, Z. WANG et J. SHI. **A Polyoxometalate Cluster Paradigm with Self-Adaptive Electronic Structure for Acidity/Reducibility-Specific Photothermal Conversion.** *Journal of the American Chemical Society* 138, 8156-8164 (2016).
- [163] W. WEI, X. ZHANG, S. ZHANG, G. WEI et Z. SU. **Biomedical and bioactive engineered nanomaterials for targeted tumor photothermal therapy: A review.** *Materials Science and Engineering : C* 104, 109891 (2019).
- [164] A. DOUGHTY, A. HOOVER, E. LAYTON, C. MURRAY, E. HOWARD et W. CHEN. **Nanomaterial Applications in Photothermal Therapy for Cancer.** *Materials* 12, 779 (2019).
- [165] J. CHEN. **Recent Advances in Carbon Nanotube-Polymer Composites.** *Advances in Materials* 6, 129 (2017).
- [166] S. NEOGI, J. S. REPARAZ, L. F. C. PEREIRA, B. GRACZYKOWSKI, M. R. WAGNER, M. SLEDZINSKA, A. SHCHEPETOV, M. PRUNNILA, J. AHOPELTO, C. M. SOTOMAYOR-TORRES et D. DONADIO. **Tuning Thermal Transport in Ultrathin Silicon Membranes by Surface Nanoscale Engineering.** *ACS Nano* 9, 3820-3828 (2015).
- [167] P. PICHANUSAKORN et P. BANDARU. **Nanostructured thermoelectrics.** *Materials Science and Engineering : R : Reports* 67, 19-63 (2010).

- [168] C. D. S. BRITES, P. P. LIMA, N. J. O. SILVA, A. MILLÁN, V. S. AMARAL, F. PALACIO et L. D. CARLOS. *Thermometry at the nanoscale*. *Nanoscale* 4, 4799 (2012).
- [169] M. QUINTANILLA et L. M. LIZ-MARZÁN. *Guiding Rules for Selecting a Nanothermometer*. *Nano Today* 19, 126–145 (2018).
- [170] F. VETRONE, R. NACCACHE, A. ZAMARRÓN, A. Juarranz de la FUENTE, F. SANZ-RODRÍGUEZ, L. MARTINEZ MAESTRO, E. MARTÍN RODRIGUEZ, D. JAQUE, J. GARCÍA SOLÉ et J. A. CAPOBIANCO. *Temperature Sensing Using Fluorescent Nanothermometers*. *ACS Nano* 4, 3254–3258 (2010).
- [171] S. KIYONAKA, T. KAJIMOTO, R. SAKAGUCHI, D. SHINMI, M. OMATSU-KANBE, H. MATSUURA, H. IMAMURA, T. YOSHIZAKI, I. HAMACHI, T. MORII et Y. MORI. *Genetically encoded fluorescent thermosensors visualize subcellular thermoregulation in living cells*. *Nature Methods* 10, 1232–1238 (2013).
- [172] G. W. WALKER, V. C. SUNDAR, C. M. RUDZINSKI, A. W. WUN, M. G. BAWENDI et D. G. NOCERA. *Quantum-dot optical temperature probes*. *Applied Physics Letters* 83, 3555–3557 (2003).
- [173] J.-M. YANG, H. YANG et L. LIN. *Quantum Dot Nano Thermometers Reveal Heterogeneous Local Thermogenesis in Living Cells*. *ACS Nano* 5, 5067–5071 (2011).
- [174] L. AIGOUY, G. TESSIER, M. MORTIER et B. CHARLOT. *Scanning thermal imaging of microelectronic circuits with a fluorescent nanoprobe*. *Applied Physics Letters* 87, 184105 (2005).
- [175] E. C. XIMENDES, W. Q. SANTOS, U. ROCHA, U. K. KAGOLA, F. SANZ-RODRÍGUEZ, N. FERNÁNDEZ, A. da S. GOUVEIA-NETO, D. BRAVO, A. M. DOMINGO, B. del ROSAL, C. D. S. BRITES, L. D. CARLOS, D. JAQUE et C. JACINTO. *Unveiling in Vivo Subcutaneous Thermal Dynamics by Infrared Luminescent Nanothermometers*. *Nano Letters* 16, 1695–1703 (2016).
- [176] H. LI, Y. ZHANG, L. SHAO, ZM HTWE et P. YUAN. *Luminescence probe for temperature sensor based on fluorescence intensity ratio*. *Optical Materials Express* 7, 1077 (2017).
- [177] J.-W. FAN, I. COJOCARU, J. BECKER, I. V. FEDOTOV, M. H. A. ALKAHTANI, A. ALAILAN, S. BLAKLEY, M. REZAEI, A. LYAMKINA, Y. N. PALYANOV, Y. M. BORZDOV, Y.-P. YANG, A. ZHELTIKOV, P. HEMMER et A. V. AKIMOV. *Germanium-Vacancy Color Center in Diamond as a Temperature Sensor*. *ACS Photonics* 5, 765–770 (2018).
- [178] S. H. KIM, J. NOH, M. K. JEON, K. W. KIM, L. P. LEE et S. Ihl. Woo. *Micro-Raman thermometry for measuring the temperature distribution inside the microchannel of a polymerase chain reaction chip*. *Journal of Micromechanics and Microengineering* 16, 526–530 (2006).
- [179] I. CALIZO, A. A. BALANDIN, W. BAO, F. MIAO et C. N. LAU. *Temperature Dependence of the Raman Spectra of Graphene and Graphene Multilayers*. *Nano Letters* 7, 2645–2649 (2007).
- [180] T. BEECHEM, A. CHRISTENSEN, S. GRAHAM et D. GREEN. *Micro-Raman thermometry in the presence of complex stresses in GaN devices*. *Journal of Applied Physics* 103, 124501 (2008).



- [181] F. YANG, G. LI, J. YANG, Z. WANG, D. HAN, F. ZHENG et S. XU. **Measurement of local temperature increments induced by cultured HepG2 cells with micro-thermocouples in a thermally stabilized system.** *Scientific Reports* 7, 1721 (2017).
- [182] L. LABRADOR-PÁEZ, M. PEDRONI, A. SPEGHINI, J. GARCÍA-SOLÉ, P. HARO-GONZÁLEZ et D. JAQUE. **Reliability of rare-earth-doped infrared luminescent nanothermometers.** *Nanoscale* 10, 22319–22328 (2018).
- [183] T. HA et P. TINNEFELD. **Photophysics of Fluorescence Probes for Single Molecule Biophysics and Super-Resolution Imaging.** *Annual review of physical chemistry* 63, 595–617 (2012).
- [184] S. ABDULLAH BINSLEM, M. R. AHMAD et Z. AWANG. **Intracellular Thermal Sensor for Single Cell Analysis –Short review.** *Jurnal Teknologi* 73 (2015).
- [185] M. M. KIM, A. GIRY, M. MASTIANI, G. O. RODRIGUES, A. REIS et P. MANDIN. **Microscale thermometry: A review.** *Microelectronic Engineering* 148, 129–142 (2015).
- [186] T. BAI et N. GU. **Micro/Nanoscale Thermometry for Cellular Thermal Sensing.** *Small* 12, 4590–4610 (2016).
- [187] L. LI, K. LIU, B. SUEN, Q. LIU, A. KING et F. E. TALKE. **Numerical and Experimental Study of Near-Field Heating Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy (TERS).** *Tribology Letters* 66, 26 (2018).
- [188] Q. WENG, S. KOMIYAMA, L. YANG, Z. AN, P. CHEN, S.-A. BIEHS, Y. KAJIHARA et W. LU. **Imaging of nonlocal hot-electron energy dissipation via shot noise.** *Science* 360, 775–778 (2018).
- [189] Y. DE WILDE, F. FORMANEK, R. CARMINATI, B. GRALAK, P.-A. LEMOINE, K. JOULAIN, J.-P. MULET, Y. CHEN et J.-J. GREFFET. **Thermal radiation scanning tunnelling microscopy.** *Nature* 444, 740–743 (2006).
- [190] M. NONNENMACHER et H. K. WICKRAMASINGHE. **Scanning probe microscopy of thermal conductivity and subsurface properties.** *Applied Physics Letters* 61, 168–170 (1992).
- [191] A MAJUMDAR. **Scanning Thermal Microscopy.** *Annual Review of Materials Science*, 82 (1999).
- [192] D. G. CAHILL, K. GOODSON et A. MAJUMDAR. **Thermometry and Thermal Transport in Micro/Nanoscale Solid-State Devices and Structures.** *Journal of Heat Transfer* 124, 223–241 (2002).
- [193] A. KITTEL, W. MÜLLER-HIRSCH, J. PARISI, S.-A. BIEHS, D. REDDIG et M. HOLTHAUS. **Near-Field Heat Transfer in a Scanning Thermal Microscope.** *Physical Review Letters* 95, 224301 (2005).
- [194] S. GOMÈS, A. ASSY et P.-O. CHAPUIS. **Scanning thermal microscopy: A review: Scanning thermal microscopy.** *physica status solidi (a)* 212, 477–494 (2015).
- [195] G.-Q. LIU, X. FENG, N. WANG, Q. LI et R.-B. LIU. **Coherent quantum control of nitrogen-vacancy center spins near 1000 kelvin.** *Nature Communications* 10, 1344 (2019).

- [196] P. REINECK, M. CAPELLI, D. W. M. LAU, J. JESKE, M. R. FIELD, T. OHSHIMA, A. D. GREENTREE et B. C. GIBSON. **Bright and photostable nitrogen-vacancy fluorescence from unprocessed detonation nanodiamond.** *Nanoscale* 9, 497–502 (2017).
- [197] S.-J. YU, M.-W. KANG, H.-C. CHANG, K.-M. CHEN et Y.-C. YU. **Bright Fluorescent Nanodiamonds: No Photobleaching and Low Cytotoxicity.** *Journal of the American Chemical Society* 127, 17604–17605 (2005).
- [198] A. M. SCHRAND, H. HUANG, C. CARLSON, J. J. SCHLAGER, E. ŌSAWA, S. M. HUSSAIN et L. DAI. **Are Diamond Nanoparticles Cytotoxic?** *The Journal of Physical Chemistry B* 111, 2–7 (2007).
- [199] T. SEKIGUCHI, S. SOTOMA et Y. HARADA. **Fluorescent nanodiamonds as a robust temperature sensor inside a single cell.** *Biophysics and Physicobiology* 15, 229–234 (2018).
- [200] J. TISLER, G. BALASUBRAMANIAN, B. NAYDENOV, R. KOLESOV, B. GROTZ, R. REUTER, J.-P. BOUDOU, P. A. CURMI, M. SENNOUR, A. THOREL, M. BÖRSCH, K. AULENBACHER, R. ERDMANN, P. R. HEMMER, F. JELEZKO et J. WRACHTRUP. **Fluorescence and Spin Properties of Defects in Single Digit Nanodiamonds.** *ACS Nano* 3, 1959–1965 (2009).
- [201] P. NEUMANN, I. JAKOBI, F. DOLDE, C. BURK, R. REUTER, G. WALDHERR, J. HONERT, T. WOLF, A. BRUNNER, J. H. SHIM, D. SUTER, H. SUMIYA, J. ISOYA et J. WRACHTRUP. **High-Precision Nanoscale Temperature Sensing Using Single Defects in Diamond.** *Nano Letters* 13, 2738–2742 (2013).
- [202] H. YUKAWA, M. FUJIWARA, K. KOBAYASHI, Y. KUMON, K. MIYAJI, Y. NISHIMURA, K. OSHIMI, Y. UMEHARA, Y. TEKI, T. IWASAKI, M. HATANO, H. HASHIMOTO et Y. BABA. **A quantum thermometric sensing and analysis system using fluorescent nanodiamonds for the evaluation of living stem cell functions according to intracellular temperature.** *Nanoscale Advances* 2, 1859–1868 (2020).
- [203] M. FUJIWARA, S. SUN, A. DOHMS, Y. NISHIMURA, K. SUTO, Y. TAKEZAWA, K. OSHIMI, L. ZHAO, N. SADZAK, Y. UMEHARA, Y. TEKI, N. KOMATSU, O. BENSON, Y. SHIKANO et E. KAGE-NAKADAI. **Real-time nanodiamond thermometry probing in vivo thermogenic responses.** *Science Advances* 6, eaba9636 (2020).
- [204] S. SOTOMA, C. ZHONG, J. C. Y. KAH, H. YAMASHITA, T. PLAKHOTNIK, Y. HARADA et M. SUZUKI. **In situ measurements of intracellular thermal conductivity using heater-thermometer hybrid diamond nanosensors.** *Science Advances* 7, eabd7888 (2021).
- [205] Y. NISHIMURA, K. OSHIMI, Y. UMEHARA, Y. KUMON, K. MIYAJI, H. YUKAWA, Y. SHIKANO, T. MATSUBARA, M. FUJIWARA, Y. BABA et Y. TEKI. **Wide-field fluorescent nanodiamond spin measurements toward real-time large-area intracellular thermometry.** *Scientific Reports* 11, 4248 (2021).

- [206] N. WANG, G.-Q. LIU, W.-H. LEONG, H. ZENG, X. FENG, S.-H. LI, F. DOLDE, H. FEDDER, J. WRACHTRUP, X.-D. CUI, S. YANG, Q. LI et R.-B. LIU. **Magnetic Criticality Enhanced Hybrid Nanodiamond Thermometer under Ambient Conditions**. *Physical Review X* 8, 011042 (2018).
- [207] T. ZHANG, G.-Q. LIU, W.-H. LEONG, C.-F. LIU, M.-H. KWOK, T. NGAI, R.-B. LIU et Q. LI. **Hybrid nanodiamond quantum sensors enabled by volume phase transitions of hydrogels**. *Nature Communications* 9, 3188 (2018).
- [208] C.-F. LIU, W.-H. LEONG, K. XIA, X. FENG, A. FINKLER, A. DENISENKO, J. WRACHTRUP, Q. LI et R.-B. LIU. **Ultra-sensitive hybrid diamond nanothermometer**. *National Science Review* 8, nwaa194 (2021).
- [209] R. TANOS. **Les capteurs à centre NV du diamant : nouvelles modalités d'imagerie**. Thèse de doctorat. Université de Montpellier, France, 2020.
- [210] D. A. SIMPSON, E. MORRISROE, J. M. MCCOEY, A. H. LOMBARD, D. C. MENDIS, F. TREUSSART, L. T. HALL, S. PETROU et L. C. L. HOLLENBERG. **Non-Neurotoxic Nanodiamond Probes for Intra-neuronal Temperature Mapping**. *ACS Nano* 11, 12077-12086 (2017).
- [211] P. ANDRICH, J. LI, X. LIU, F. J. HEREMANS, P. F. NEALEY et D. D. AWSCHALOM. **Microscale-Resolution Thermal Mapping Using a Flexible Platform of Patterned Quantum Sensors**. *Nano Letters* 18, 4684-4690 (2018).
- [212] J. CHOI, H. ZHOU, R. LANDIG, H.-Y. WU, X. YU, S. E. VON STETINA, G. KUCSKO, S. E. MANGO, D. J. NEEDLEMAN, A. D. T. SAMUEL, P. C. MAURER, H. PARK et M. D. LUKIN. **Probing and manipulating embryogenesis via nanoscale thermometry and temperature control**. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 117, 14636-14641 (2020).
- [213] A. LARAoui, H. AYCOCK-RIZZO, Y. GAO, X. LU, E. RIEDO et C. A. MERILES. **Imaging thermal conductivity with nanoscale resolution using a scanning spin probe**. *Nature Communications* 6, 8954 (2015).
- [214] J.-P. TETIENNE, A. LOMBARD, D. A. SIMPSON, C. RITCHIE, J. LU, P. MULVANEY et L. C. L. HOLLENBERG. **Scanning Nanospin Ensemble Microscope for Nanoscale Magnetic and Thermal Imaging**. *Nano Letters* 16, 326-333 (2016).
- [215] R. TANOS, W. AKHTAR, S. MONNERET, F. Favaro de OLIVEIRA, G. SENIUTINAS, M. MUNSCHE, P. MALETINSKY, L. le GRATIET, I. SAGNES, A. DRÉAU, C. GERGELY, V. JACQUES, G. BAFFOU et I. ROBERT-PHILIP. **Optimal architecture for diamond-based wide-field thermal imaging**. *AIP Advances* 10, 025027 (2020).
- [216] B. K. OFORI-OKAI, S. PEZZAGNA, K. CHANG, M. LORETZ, R. SCHIRHAGL, Y. TAO, B. A. MOORES, K. GROOT-BERNING, J. MEIJER et C. L. DEGEN. **Spin properties of very shallow nitrogen vacancy defects in diamond**. *Physical Review B* 86, 081406 (2012).

- [217] J.-P. TETIENNE, R. W. de GILLE, D. A. BROADWAY, T. TERAJI, S. E. LILLIE, J. M. MCCOEY, N. DONTSCHUK, L. T. HALL, A. STACEY, D. A. SIMPSON et L. C. L. HOLLENBERG. *Spin properties of dense near-surface ensembles of nitrogen-vacancy centers in diamond*. *Physical Review B* 97, 085402 (2018).
- [218] S. SANGTAWESIN, B. L. DWYER, S. SRINIVASAN, J. J. ALLRED, L. V. H. RODGERS, K. DE GREVE, A. STACEY, N. DONTSCHUK, K. M. O'DONNELL, D. HU, D. A. EVANS, C. JAYE, D. A. FISCHER, M. L. MARKHAM, D. J. TWITCHEN, H. PARK, M. D. LUKIN et N. P. de LEON. *Origins of Diamond Surface Noise Probed by Correlating Single-Spin Measurements with Surface Spectroscopy*. *Physical Review X* 9, 031052 (2019).
- [219] M. FUJIWARA et Y. SHIKANO. *Diamond quantum thermometry: from foundations to applications*. *Nanotechnology* 32, 482002 (2021).
- [220] A. LARAOUI, J. S. HODGES et C. A. MERILES. *Nitrogen-Vacancy-Assisted Magnetometry of Paramagnetic Centers in an Individual Diamond Nanocrystal*. *Nano Letters* 12, 3477–3482 (2012).
- [221] J.-P. TETIENNE, T. HINGANT, L. RONDIN, A. CAVAILLÈS, L. MAYER, G. DANTELLE, T. GACOIN, J. WRACHTRUP, J.-F. ROCH et V. JACQUES. *Spin relaxometry of single nitrogen-vacancy defects in diamond nanocrystals for magnetic noise sensing*. *Physical Review B* 87, 235436 (2013).
- [222] M. LESIK, T. PLAYS, A. TALLAIRE, J. ACHARD, O. BRINZA, L. WILLIAM, M. CHIPAUX, L. TORAILLE, T. DEBUSSCHERT, A. GICQUEL, J.-F. ROCH et V. JACQUES. *Preferential orientation of NV defects in CVD diamond films grown on (113)-oriented substrates*. *Diamond and Related Materials* 56, 47–53 (2015).
- [223] S. CHOUAIEB, L. J. MARTÍNEZ, W. AKHTAR, I. ROBERT-PHILIP, A. DRÉAU, O. BRINZA, J. ACHARD, A. TALLAIRE et V. JACQUES. *Optimizing synthetic diamond samples for quantum sensing technologies by tuning the growth temperature*. *Diamond and Related Materials* 96, 85–89 (2019).
- [224] S. LI, J.-P. CHOU, J. WEI, M. SUN, A. HU et A. GALI. *Oxygenated (113) diamond surface for nitrogen-vacancy quantum sensors with preferential alignment and long coherence time from first principles*. *Carbon* 145, 273–280 (2019).
- [225] P. BALASUBRAMANIAN, C. OSTERKAMP, O. BRINZA, M. ROLLO, I. ROBERT-PHILIP, P. GOLDNER, V. JACQUES, F. JELEZKO, J. ACHARD et A. TALLAIRE. *Enhancement of the creation yield of NV ensembles in a chemically vapour deposited diamond*. *Carbon* 194, 282–289 (2022).
- [226] G. BAFFOU. *Thermoplasmonics : Heating Metal Nanoparticles Using Light*. Cambridge : Cambridge University Press, 2017.
- [227] H. MATHIEU et H. FANET. *Physique des semiconducteurs et des composants électroniques – 6ème édition : Cours et exercices corrigés*. Dunod, 2009.

- [228] T. WOLF, P. NEUMANN, K. NAKAMURA, H. SUMIYA, T. OHSHIMA, J. ISOYA et J. WRACHTRUP. *Subpicotesla Diamond Magnetometry*. *Physical Review X* 5, 041001 (2015).
- [229] L. T. HALL, J. H. COLE, C. D. HILL et L. C. L. HOLLENBERG. *Sensing of Fluctuating Nanoscale Magnetic Fields Using Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond*. *Physical Review Letters* 103, 220802 (2009).
- [230] D. SCHMID-LORCH, T. HÄBERLE, F. REINHARD, A. ZAPPE, M. SLOTA, L. BOGANI, A. FINKLER et J. WRACHTRUP. *Relaxometry and Dephasing Imaging of Superparamagnetic Magnetite Nanoparticles Using a Single Qubit*. *Nano Letters* 15, 4942-4947 (2015).
- [231] T. JUNGWIRTH, X. MARTI, P. WADLEY et J. WUNDERLICH. *Antiferromagnetic spintronics*. *Nature Nanotechnology* 11, 231-241 (2016).
- [232] V. BALTZ, A. MANCHON, M. TSOI, T. MORIYAMA, T. ONO et Y. TSEKOVNYAK. *Antiferromagnetic spintronics*. *Reviews of Modern Physics* 90, 015005 (2018).
- [233] T. JUNGWIRTH, J. SINOVA, A. MANCHON, X. MARTI, J. WUNDERLICH et C. FELSER. *The multiple directions of antiferromagnetic spintronics*. *Nature Physics* 14, 200-203 (2018).
- [234] M. L. NÉEL. *Propriétés magnétiques de l'état métallique et énergie d'interaction entre atomes magnétiques*. *Annales de physique* 11, 232-279 (1936).
- [235] M. L. NÉEL. *Propriétés magnétiques des ferrites ; ferrimagnétisme et antiferromagnétisme*. *Annales de Physique* 12, 137-198 (1948).
- [236] X. MARTI, I. FINA, C. FRONTERA, J. LIU, P. WADLEY, Q. HE, R. J. PAULL, J. D. CLARKSON, J. KUDRNOVSKÝ, I. TUREK, J. KUNEŠ, D. YI, J.-H. CHU, C. T. NELSON, L. YOU, E. ARENHOLZ, S. SALAHUDDIN, J. FONTCUBERTA, T. JUNGWIRTH et R. RAMESH. *Room-temperature antiferromagnetic memory resistor*. *Nature Materials* 13, 367-374 (2014).
- [237] P. WADLEY et al. *Electrical switching of an antiferromagnet*. *Science* 351, 587-590 (2016).
- [238] T. KAMPFRATH, A. SELL, G. KLATT, A. PASHKIN, S. MÄHRLEIN, T. DEKORSY, M. WOLF, M. FIEBIG, A. LEITENSTORFER et R. HUBER. *Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves*. *Nature Photonics* 5, 31-34 (2011).
- [239] S. BAIERL, J. H. MENTINK, M. HOHENLEUTNER, L. BRAUN, T.-M. DO, C. LANGE, A. SELL, M. FIEBIG, G. WOLTERS DORF, T. KAMPFRATH et R. HUBER. *Terahertz-Driven Nonlinear Spin Response of Antiferromagnetic Nickel Oxide*. *Physical Review Letters* 117, 197201 (2016).
- [240] A. KIRILYUK, A. V. KIMEL et T. RASING. *Ultrafast optical manipulation of magnetic order*. *Reviews of Modern Physics* 82, 2731-2784 (2010).
- [241] I. M. MIRON, T. MOORE, H. SZAMBOLICS, L. D. BUDA-PREJBEANU, S. AUFFRET, B. RODMACQ, S. PIZZINI, J. VOGEL, M. BONFIM, A. SCHUHL et G. GAUDIN. *Fast current-induced domain-wall motion controlled by the Rashba effect*. *Nature Materials* 10, 419-423 (2011).

- [242] E. G. TVETEN, A. QAIUMZADEH et A. BRATAAS. *Antiferromagnetic Domain Wall Motion Induced by Spin Waves*. *Physical Review Letters* 112, 147204 (2014).
- [243] S.-H. YANG, K.-S. RYU et S. PARKIN. *Domain-wall velocities of up to 750 m s<sup>-1</sup> driven by exchange-coupling torque in synthetic antiferromagnets*. *Nature Nanotechnology* 10, 221–226 (2015).
- [244] O. GOMONAY, T. JUNGWIRTH et J. SINOVA. *High Antiferromagnetic Domain Wall Velocity Induced by Néel Spin-Orbit Torques*. *Physical Review Letters* 117, 017202 (2016).
- [245] A. SCHOLL, J. STÖHR, J. LÜNING, J. W. SEO, J. FOMPEYRINE, H. SIEGWART, J.-P. LOCQUET, F. NOLTING, S. ANDERS, E. E. FULLERTON, M. R. SCHEINFEIN et H. A. PADMORE. *Observation of Antiferromagnetic Domains in Epitaxial Thin Films*. *Science* 287, 1014–1016 (2000).
- [246] S. HEINZE, M. BODE, A. KUBETZKA, O. PIETZSCH, X. NIE, S. BLÜGEL et R. WIESENDANGER. *Real-Space Imaging of Two-Dimensional Antiferromagnetism on the Atomic Scale*. *Science* 288, 1805–1808 (2000).
- [247] M. BODE, M. HEIDE, K. von BERGMANN, P. FERRIANI, S. HEINZE, G. BIHLMAYER, A. KUBETZKA, O. PIETZSCH, S. BLÜGEL et R. WIESENDANGER. *Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry*. *Nature* 447, 190–193 (2007).
- [248] B. FLEBUS, H. OCHOA, P. UPADHYAYA et Y. TSERKOVNYAK. *Proposal for dynamic imaging of antiferromagnetic domain wall via quantum-impurity relaxometry*. *Physical Review B* 98, 180409 (2018).
- [249] S. KOLKOWITZ, A. SAFIRA, A. A. HIGH, R. C. DEVLIN, S. CHOI, Q. P. UNTERREITHMEIER, D. PATTERSON, A. S. ZIBROV, V. E. MANUCHARYAN, H. PARK et M. D. LUKIN. *Probing Johnson noise and ballistic transport in normal metals with a single-spin qubit*. *Science* 347, 1129–1132 (2015).
- [250] A. ARIYARATNE, D. BLUVSTEIN, B. A. MYERS et A. C. BLESZYNSKI JAYICH. *Nanoscale electrical conductivity imaging using a nitrogen-vacancy center in diamond*. *Nature Communications* 9, 2406 (2018).
- [251] A. ERMAKOVA, G. PRAMANIK, J.-M. CAI, G. ALGARA-SILLER, U. KAISER, T. WEIL, Y.-K. TZENG, H. C. CHANG, L. P. MCGUINNESS, M. B. PLENIO, B. NAYDENOV et F. JELEZKO. *Detection of a Few Metallo-Protein Molecules Using Color Centers in Nanodiamonds*. *Nano Letters* 13, 3305–3309 (2013).
- [252] S. STEINERT, F. ZIEM, L. T. HALL, A. ZAPPE, M. SCHWEIKERT, N. GÖTZ, A. AIRD, G. BALASUBRAMANIAN, L. HOLLENBERG et J. WRACHTRUP. *Magnetic spin imaging under ambient conditions with sub-cellular resolution*. *Nature Communications* 4, 1607 (2013).

- [253] M. PELLICCIONE, B. A. MYERS, L. M. A. PASCAL, A. DAS et A. C. BLESZYNSKI JAYICH. **Two-Dimensional Nanoscale Imaging of Gadolinium Spins via Scanning Probe Relaxometry with a Single Spin in Diamond.** *Physical Review Applied* 2, 054014 (2014).
- [254] A. O. SUSHKOV, N. CHISHOLM, I. LOVCHINSKY, M. KUBO, P. K. LO, S. D. BENNETT, D. HUNGER, A. AKIMOV, R. L. WALSWORTH, H. PARK et M. D. LUKIN. **All-Optical Sensing of a Single-Molecule Electron Spin.** *Nano Letters* 14, 6443–6448 (2014).
- [255] T. I. ANDERSEN, B. L. DWYER, J. D. SANCHEZ-YAMAGISHI, J. F. RODRIGUEZ-NIEVA, K. AGARWAL, K. WATANABE, T. TANIGUCHI, E. A. DEMLER, P. KIM, H. PARK et M. D. LUKIN. **Electron-phonon instability in graphene revealed by global and local noise probes.** *Science* 364, 154–157 (2019).
- [256] T. RENDLER, J. NEBURKOVA, O. ZEMEK, J. KOTEK, A. ZAPPE, Z. CHU, P. CIGLER et J. WRACHTRUP. **Optical imaging of localized chemical events using programmable diamond quantum nanosensors.** *Nature Communications* 8, 14701 (2017).
- [257] T. FUJISAKU, R. TANABE, S. ONODA, R. KUBOTA, T. F. SEGAWA, F. T.-K. SO, T. OHSHIMA, I. HAMACHI, M. SHIRAKAWA et R. IGARASHI. **pH Nanosensor Using Electronic Spins in Diamond.** *ACS Nano* 13, 11726–11732 (2019).
- [258] J. BARTON, M. GULKA, J. TARABEK, Y. MINDARAVA, Z. WANG, J. SCHIMER, H. RAABOVA, J. BEDNAR, M. B. PLENIO, F. JELEZKO, M. NESLADEK et P. CIGLER. **Nanoscale Dynamic Readout of a Chemical Redox Process Using Radicals Coupled with Nitrogen-Vacancy Centers in Nanodiamonds.** *ACS Nano* 14, 12938–12950 (2020).
- [259] T. van der SAR, F. CASOLA, R. WALSWORTH et A. YACOBY. **Nanometre-scale probing of spin waves using single electron spins.** *Nature Communications* 6, 7886 (2015).
- [260] C. DU, T. van der SAR, T. X. ZHOU, P. UPADHYAYA, F. CASOLA, H. ZHANG, M. C. ONBASLI, C. A. ROSS, R. L. WALSWORTH, Y. TSEKOVNYAK et A. YACOBY. **Control and local measurement of the spin chemical potential in a magnetic insulator.** *Science* 357, 195–198 (2017).
- [261] E. LEE-WONG, R. XUE, F. YE, A. KREISEL, T. van der SAR, A. YACOBY et C. R. DU. **Nanoscale Detection of Magnon Excitations with Variable Wavevectors Through a Quantum Spin Sensor.** *Nano Letters* 20, 3284–3290 (2020).
- [262] T. ROSSKOPF, A. DUSSAUX, K. OHASHI, M. LORETZ, R. SCHIRHAGL, H. WATANABE, S. SHIKATA, K. M. ITOH et C. L. DEGEN. **Investigation of Surface Magnetic Noise by Shallow Spins in Diamond.** *Physical Review Letters* 112, 147602 (2014).
- [263] N ASLAM, G WALDHERR, P NEUMANN, F JELEZKO et J WRACHTRUP. **Photo-induced ionization dynamics of the nitrogen vacancy defect in diamond investigated by single-shot charge state detection.** *New Journal of Physics* 15, 013064 (2013).

- [264] S. BLUNDELL. *Magnetism in Condensed Matter*. 1st edition. Oxford : Oxford University Press, 2001.
- [265] I. E. DZIALOSHINSKY. *Soviet Physics JETP* 5, 1259 (1957).
- [266] I. DZIALOSHINSKY. A thermodynamic theory of "weak" ferromagnetism of antiferromagnetics. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 4, 241–255 (1958).
- [267] T. MORIYA. Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism. *Physical Review* 120, 91–98 (1960).
- [268] W. LEGRAND, D. MACCARIELLO, F. AJEJAS, S. COLLIN, A. VECCHIOLA, K. BOUZEHOANE, N. REYREN, V. CROS et A. FERT. Room-temperature stabilization of antiferromagnetic skyrmions in synthetic antiferromagnets. *Nature Materials* 19, 34–42 (2020).
- [269] A. FINCO, A. HAYKAL, R. TANOS, F. FABRE, S. CHOUAIEB, W. AKHTAR, I. ROBERT-PHILIP, W. LEGRAND, F. AJEJAS, K. BOUZEHOANE, N. REYREN, T. DEVOLDER, J.-P. ADAM, J.-V. KIM, V. CROS et V. JACQUES. Imaging non-collinear antiferromagnetic textures via single spin relaxometry. *Nature Communications* 12, 767 (2021).
- [270] F. GARCIA-SANCHEZ, P. BORYS, R. SOUCAILLE, J.-P. ADAM, R. L. STAMPS et J.-V. KIM. Narrow Magnonic Waveguides Based on Domain Walls. *Physical Review Letters* 114, 247206 (2015).
- [271] H.-K. PARK et S.-K. KIM. Channeling of spin waves in antiferromagnetic domain walls. *Phys. Rev. B* 103, 214420 (2021).
- [272] B. G. SIMON, S. KURDI, J. J. CARMIGGELT, M. BORST, A. KATAN et T. van der SAR. Filtering and imaging of frequency-degenerate spin waves using nanopositioning of a single-spin sensor. *arXiv* (2022).
- [273] L. HANLON, V. GAUTAM, J. D. A. WOOD, P. REDDY, M. S. J. BARSON, M. NIIHORI, A. R. J. SILALAH, B. CORRY, J. WRACHTRUP, M. J. SELLARS, V. R. DARIA, P. MALETINSKY, G. J. STUART et M. W. DOHERTY. Diamond nanopillar arrays for quantum microscopy of neuronal signals. *Neurophotonics* 7, 035002 (2020).
- [274] D. D. KHALYAVIN, R. D. JOHNSON, F. ORLANDI, P. G. RADAELLI, P. MANUEL et A. A. BELIK. Emergent helical texture of electric dipoles. *Science* 369, 680–684 (2020).
- [275] S. DAS et al. Observation of room-temperature polar skyrmions. *Nature* 568, 368–372 (2019).
- [276] N. NAGAOSA et Y. TOKURA. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions. *Nature Nanotechnology* 8, 899–911 (2013).
- [277] K. von BERGMANN, A. KUBETZKA, O. PIETZSCH et R. WIESENDANGER. Interface-induced chiral domain walls, spin spirals and skyrmions revealed by spin-polarized scanning tunneling microscopy. *Journal of Physics : Condensed Matter* 26, 394002 (2014).



- [278] F. WU, T. LOVORN, E. TUTUC et A. H. MACDONALD. [Hubbard Model Physics in Transition Metal Dichalcogenide Moiré Bands](#). *Physical Review Letters* 121, 026402 (2018).
- [279] J. A. MUNDY et al. [Atomically engineered ferroic layers yield a room-temperature magnetoelectric multiferroic](#). *Nature* 537, 523–527 (2016).
- [280] M. FIEBIG, T. LOTTERMOSER, D. MEIER et M. TRASSIN. [The evolution of multiferroics](#). *Nature Reviews Materials* 1, 1–14 (2016).
- [281] R. SCHIRHAGL, K. CHANG, M. LORETZ et C. L. DEGEN. [Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond: Nanoscale Sensors for Physics and Biology](#). *Annual Review of Physical Chemistry* 65, 83–105 (2014).
- [282] J. F. BARRY, M. J. TURNER, J. M. SCHLOSS, D. R. GLENN, Y. SONG, M. D. LUKIN, H. PARK et R. L. WALSWORTH. [Optical magnetic detection of single-neuron action potentials using quantum defects in diamond](#). *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113, 14133–14138 (2016).
- [283] H. LIU, M. B. PLENIO et J. CAI. [Scheme for Detection of Single-Molecule Radical Pair Reaction Using Spin in Diamond](#). *Physical Review Letters* 118, 200402 (2017).
- [284] G. PETRINI, E. MOREVA, E. BERNARDI, P. TRAINA, G. TOMAGRA, V. CARABELLI, I. P. DEGIOVANNI et M. GENOVESE. [Is a Quantum Biosensing Revolution Approaching? Perspectives in NV-Assisted Current and Thermal Biosensing in Living Cells](#). *Advanced Quantum Technologies* 3, 2000066 (2020).
- [285] J. L. WEBB, L. TROISE, N. W. HANSEN, C. OLSSON, A. M. WOJCIECHOWSKI, J. ACHARD, O. BRINZA, R. STAACKE, M. KIESCHNICK, J. MEIJER, A. THIELSCHER, J.-F. PERRIER, K. BERG-SØRENSEN, A. HUCK et U. L. ANDERSEN. [Detection of biological signals from a live mammalian muscle using an early stage diamond quantum sensor](#). *Scientific Reports* 11, 2412 (2021).
- [286] C. D. BRUZEWICZ, J. M. SAGE et J. CHIAVERINI. [Measurement of ion motional heating rates over a range of trap frequencies and temperatures](#). *Physical Review A* 91, 041402 (2015).
- [287] A. OSTERWALDER et F. MERKT. [Using High Rydberg States as Electric Field Sensors](#). *Physical Review Letters* 82, 1831–1834 (1999).
- [288] J. A. SEDLACEK, A. SCHWETTMANN, H. KÜBLER, R. LÖW, T. PFAU et J. P. SHAFFER. [Microwave electrometry with Rydberg atoms in a vapour cell using bright atomic resonances](#). *Nature Physics* 8, 819–824 (2012).
- [289] A. N. CLELAND et M. L. ROUKES. [A nanometre-scale mechanical electrometer](#). *Nature* 392, 160–162 (1998).

- [290] J. S. BUNCH, A. M. van der ZANDE, S. S. VERBRIDGE, I. W. FRANK, D. M. TANENBAUM, J. M. PARPIA, H. G. CRAIGHEAD et P. L. McEUEEN. *Electromechanical Resonators from Graphene Sheets*. *Science* 315, 490–493 (2007).
- [291] M. J. YOO, T. A. FULTON, H. F. HESS, R. L. WILLET, L. N. DUNKLEBERGER, R. J. CHICHESTER, L. N. PFEIFFER et K. W. WEST. *Scanning Single-Electron Transistor Microscopy: Imaging Individual Charges*. *Science* 276, 579–582 (1997).
- [292] M. H. DEVORET et R. J. SCHÖELKOPF. *Amplifying quantum signals with the single-electron transistor*. *Nature* 406, 1039–1046 (2000).
- [293] J. MARTIN, N. AKERMAN, G. ULBRICHT, T. LOHMANN, J. H. SMET, K. von KLITZING et A. YACOBY. *Observation of electron-hole puddles in graphene using a scanning single-electron transistor*. *Nature Physics* 4, 144–148 (2008).
- [294] C. NEUMANN, C. VOLK, S. ENGELS et C. STAMPFER. *Graphene-based charge sensors*. *Nanotechnology* 24, 444001 (2013).
- [295] A. K. HENNING, T. HOCHWITZ, J. SLINKMAN, J. NEVER, S. HOFFMANN, P. KASZUBA et C. DAGHLIAN. *Two-dimensional surface dopant profiling in silicon using scanning Kelvin probe microscopy*. *Journal of Applied Physics* 77, 1888–1896 (1995).
- [296] C. SCHÖNENBERGER et S. F. ALVARADO. *Observation of single charge carriers by force microscopy*. *Physical Review Letters* 65, 3162–3164 (1990).
- [297] C. C. WILLIAMS, J. SLINKMAN, W. P. HOUGH et H. K. WICKRAMASINGHE. *Lateral dopant profiling with 200 nm resolution by scanning capacitance microscopy*. *Applied Physics Letters* 55, 1662–1664 (1989).
- [298] S. V. KALININ, A. RAR et S. JESSE. *A decade of piezoresponse force microscopy: progress, challenges, and opportunities*. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* 53, 2226–2252 (2006).
- [299] E. SOERTEL. *Piezoresponse force microscopy (PFM)*. *Journal of Physics D : Applied Physics* 44, 464003 (2011).
- [300] D. SEOL, B. KIM et Y. KIM. *Non-piezoelectric effects in piezoresponse force microscopy*. *Current Applied Physics*. Oxide Heterostructure Research in Korea 17, 661–674 (2017).
- [301] A. GRUVERMAN, M. ALEXE et D. MEIER. *Piezoresponse force microscopy and nanoferroic phenomena*. *Nature Communications* 10, 1661 (2019).
- [302] E. H. CHEN, H. A. CLEVENSON, K. A. JOHNSON, L. M. PHAM, D. R. ENGLUND, P. R. HEMMER et D. A. BRAJE. *High-sensitivity spin-based electrometry with an ensemble of nitrogen-vacancy centers in diamond*. *Physical Review A* 95, 053417 (2017).

- [303] J. MICHL, J. STEINER, A. DENISENKO, A. BÜLAU, A. ZIMMERMANN, K. NAKAMURA, H. SUMIYA, S. ONODA, P. NEUMANN, J. ISOYA et J. WRACHTRUP. **Robust and Accurate Electric Field Sensing with Solid State Spin Ensembles.** *Nano Letters* 19, 4904–4910 (2019).
- [304] T. IWASAKI, W. NARUKI, K. TAHARA, T. MAKINO, H. KATO, M. OGURA, D. TAKEUCHI, S. YAMASAKI et M. HATANO. **Direct Nanoscale Sensing of the Internal Electric Field in Operating Semiconductor Devices Using Single Electron Spins.** *ACS Nano* 11, 1238–1245 (2017).
- [305] D. A. BROADWAY, N. DONTSCHUK, A. TSAI, S. E. LILLIE, C. T.-K. LEW, J. C. MCCALLUM, B. C. JOHNSON, M. W. DOHERTY, A. STACEY, L. C. L. HOLLENBERG et J.-P. TETIENNE. **Spatial mapping of band bending in semiconductor devices using in situ quantum sensors.** *Nature Electronics* 1, 502–507 (2018).
- [306] R. LI, F. KONG, P. ZHAO, Z. CHENG, Z. QIN, M. WANG, Q. ZHANG, P. WANG, Y. WANG, F. SHI et J. DU. **Nanoscale Electrometry Based on a Magnetic-Field-Resistant Spin Sensor.** *Physical Review Letters* 124, 247701 (2020).
- [307] B. YANG, T. MUROOKA, K. MIZUNO, K. KIM, H. KATO, T. MAKINO, M. OGURA, S. YAMASAKI, M. E. SCHMIDT, H. MIZUTA, A. YACOBY, M. HATANO et T. IWASAKI. **Vector Electrometry in a Wide-Gap-Semiconductor Device Using a Spin-Ensemble Quantum Sensor.** *Physical Review Applied* 14, 044049 (2020).
- [308] M. BLOCK, B. KOBRIN, A. JARMOLA, S. HSIEH, C. ZU, N. L. FIGUEROA, V. M. ACOSTA, J. MINGUZZI, J. R. MAZE, D. BUDKER et N. Y. YAO. **Optically Enhanced Electric Field Sensing Using Nitrogen-Vacancy Ensembles.** *Physical Review Applied* 16, 024024 (2021).
- [309] M. S. J. BARSON, L. M. OBERG, L. P. MCGUINNESS, A. DENISENKO, N. B. MANSON, J. WRACHTRUP et M. W. DOHERTY. **Nanoscale Vector Electric Field Imaging Using a Single Electron Spin.** *Nano Letters* 21, 2962–2967 (2021).
- [310] K. BIAN, W. ZHENG, X. ZENG, X. CHEN, R. STÖHR, A. DENISENKO, S. YANG, J. WRACHTRUP et Y. JIANG. **Nanoscale electric-field imaging based on a quantum sensor and its charge-state control under ambient condition.** *Nature Communications* 12, 2457 (2021).
- [311] M. MERTENS, M. MOHR, K. BRÜHNE, H. J. FECHT, M. ŁOJKOWSKI, W. ŚWIĘSZKOWSKI et W. ŁOJKOWSKI. **Patterned hydrophobic and hydrophilic surfaces of ultra-smooth nanocrystalline diamond layers.** *Applied Surface Science* 390, 526–530 (2016).
- [312] A. STACEY, N. DONTSCHUK, J.-P. CHOU, D. A. BROADWAY, A. K. SCHENK, M. J. SEAR, J.-P. TETIENNE, A. HOFFMAN, S. PRAWER, C. I. PAKES, A. TADICH, N. P. de LEON, A. GALI et L. C. L. HOLLENBERG. **Evidence for Primal sp<sup>2</sup> Defects at the Diamond Surface: Candidates for Electron Trapping and Noise Sources.** *Advanced Materials Interfaces* 6, 1801449 (2019).

- [313] L. M. OBERG, M. O. de VRIES, L. HANLON, K. STRAZDINS, M. S. J. BARSON, M. W. DOHERTY et J. WRACHTRUP. [Solution to Electric Field Screening in Diamond Quantum Electrometers](#). *Physical Review Applied* 14, 014085 (2020).
- [314] W. S. HUXTER, M. L. PALM, M. L. DAVIS, P. WELTER, C.-H. LAMBERT, M. TRASSIN et C. L. DEGEN. [Scanning gradiometry with a single spin quantum magnetometer](#). *Nature Communications* 13 (2022).
- [315] C. S. SHIN, C. E. AVALOS, M. C. BUTLER, H.-J. WANG, S. J. SELTZER, R.-B. LIU, A. PINES et V. S. BAJAJ. [Suppression of electron spin decoherence of the diamond NV center by a transverse magnetic field](#). *Phys. Rev. B* 88, 161412 (2013).
- [316] Z. QIU, A. HAMO, U. VOOL, T. X. ZHOU et A. YACOBY. [Nanoscale electric field imaging with an ambient scanning quantum sensor microscope](#). *npj Quantum Information* 8, 1-7 (2022).
- [317] H. WANG, S. ZHANG, N. J. MCLAUGHLIN, B. FLEBUS, M. HUANG, Y. XIAO, C. LIU, M. WU, E. E. FULLERTON, Y. TSEKOVNYAK et C. R. DU. [Noninvasive measurements of spin transport properties of an antiferromagnetic insulator](#). *Science Advances* 8, eabg8562 (2022).
- [318] J. SEIDEL, L. W. MARTIN, Q. HE, Q. ZHAN, Y.-H. CHU, A. ROTHER, M. E. HAWKRIDGE, P. MAKSYMOWYCH, P. YU, M. GAJEK, N. BALKE, S. V. KALININ, S. GEMMING, F. WANG, G. CATALAN, J. F. SCOTT, N. A. SPALDIN, J. ORENSTEIN et R. RAMESH. [Conduction at domain walls in oxide multiferroics](#). *Nature Materials* 8, 229-234 (2009).
- [319] K. UCHIDA, S. TAKAHASHI, K. HARIU, J. IEDA, W. KOSHIBAE, K. ANDO, S. MAEKAWA et E. SAITOH. [Observation of the spin Seebeck effect](#). *Nature* 455, 778-781 (2008).
- [320] J. LAJZEROWICZ et J. J. NIEZ. [Phase transition in a domain wall](#). *Journal de Physique Lettres* 40, 165-169 (1979).
- [321] T. HINGANT, J.-P. TETIENNE, L. J. MARTÍNEZ, K. GARCIA, D. RAVELOSONA, J.-F. ROCH et V. JACQUES. [Measuring the Magnetic Moment Density in Patterned Ultrathin Ferromagnets with Submicrometer Resolution](#). *Physical Review Applied* 4, 014003 (2015).
- [322] L. THIEL. [Nanoscale magnetometry with a single spin in diamond at cryogenic temperatures](#). Thesis. University of Basel, 2019.
- [323] M. ORTNER et L. G. COLIADO BANDEIRA. [Magpylib: A free Python package for magnetic field computation](#). *SoftwareX* 11, 100466 (2020).



# RÉSUMÉ

---

La compréhension des phénomènes physiques et le développement technologique de composants et systèmes aux nano-échelles requièrent des outils de mesure résolus à ces échelles. Un moyen est d'utiliser des capteurs de très faibles volumes. Parmi ceux-ci, les capteurs s'appuyant sur les spins électroniques individuels associés au centre azote-lacune (ou centre NV pour *Nitrogen-Vacancy*) dans le diamant sont devenus une technique d'intérêt fort. Ces capteurs, de volume atomique, sont en effet extrêmement sensibles à plusieurs grandeurs physiques dans leur environnement. Ces grandeurs peuvent sonder en mesurant le spectre de résonance magnétique du spin électronique par des moyens optiques. Ces capteurs sont aujourd'hui employés pour cartographier des champs magnétiques statiques avec une sensibilité en deçà du  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  et une résolution spatiale de l'ordre de 50 nm en conditions ambiantes.

Ce spin est aussi sensible à d'autres grandeurs physiques, notamment le bruit magnétique, la température et le champ électrique. Ce travail de thèse a porté sur l'extension des modalités d'imagerie des capteurs à centre NV, pour en faire un imageur polyvalent. La configuration d'imagerie est une configuration à balayage dans laquelle le centre NV est isolé au sein d'une pointe en diamant montée dans un microscope à force atomique. J'ai tout d'abord considéré une pointe hébergeant un ensemble de centres NV et optimisée pour la cartographie de la température dans le but de déterminer ses performances ultimes en termes de sensibilité et de résolution spatiale. J'ai ensuite étudié l'effet du champ électrique sur les propriétés de spin du centre NV, et présenté les conditions expérimentales requises pour réaliser une cartographie du champ électrique. Enfin, j'ai proposé un nouveau protocole tout-optique pour cartographier qualitativement le bruit magnétique, bruit qui affecte la dynamique de relaxation entre les niveaux de spin et par là même le niveau de photoluminescence du centre NV. Ce protocole a été validé en imageant des parois de domaines dans un matériau antiferromagnétique synthétique.

Ce microscope à balayage polyvalent pourra permettre l'étude, sur un dispositif unique, des propriétés magnétiques (champ et/ou bruit magnétique), électriques ou encore thermiques d'un matériau d'intérêt et par là même de sonder le couplage entre ces différents paramètres physiques.

# ABSTRACT

---

The understanding of physical phenomena and the technological development of components and systems at the nanoscale require measurement tools that are resolved at these scales. One way is to use very small volume sensors. Among these, sensors based on individual electron spins associated with the nitrogen-vacancy center (or NV center) in diamond, have become a technique of great interest. These sensors, of atomic volume, are indeed extremely sensitive to several physical quantities in their environment. These quantities can be probed by measuring the electron spin resonance spectrum by optical means. These sensors are used today to map static magnetic fields with a sensitivity below  $\mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$  and a spatial resolution of the order of 50 nm in ambient conditions.

This spin is also sensitive to other physical quantities, including magnetic noise, temperature and electric field. This thesis work focused on extending the imaging modalities of the NV center sensors, to make it a versatile imager. The imaging configuration is a scanning probe configuration in which the NV center is isolated within a diamond tip mounted in an atomic force microscope. I first considered a tip hosting an ensemble of NV centers and optimized for temperature mapping in order to determine its ultimate performance in terms of sensitivity and spatial resolution. I then studied the effect of the electric field on the spin properties of the NV center, and investigated the experimental conditions required to perform electric field imaging. Finally, I proposed a new all-optical protocol to qualitatively map the magnetic noise, which affects the relaxation dynamics between the spin levels and thus the photoluminescence level of the NV center. This protocol has been validated by imaging domain walls in a synthetic antiferromagnetic material.

This versatile scanning microscope will allow the study, on a single device, of the magnetic (field and/or magnetic noise), electrical or thermal properties of a material of interest and at the same time to study the coupling between these different physical parameters.