



**HAL**  
open science

# Mise au point d'un microscope à centre azote-lacune dans un électro-aimant

Eric Clot

► **To cite this version:**

Eric Clot. Mise au point d'un microscope à centre azote-lacune dans un électro-aimant. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2024. Français. NNT : 2024GRALY015 . tel-04660787

**HAL Id: tel-04660787**

**<https://theses.hal.science/tel-04660787v1>**

Submitted on 24 Jul 2024

**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 GRENOBLE ALPES**

École doctorale : PHYS - Physique

Spécialité : Nanophysique

Unité de recherche : Spintronique et Technologie des Composants

**Mise au point d'un microscope à centre azote-lacune dans un électro-aimant**

**Nuts and bolts approach to developing a nitrogen-vacancy microscope inside an electromagnet**

Présentée par :

**Eric CLOT**

Direction de thèse :

**Olivier KLEIN**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CEA CENTRE DE GRENOBLE

Directeur de thèse

**Benjamin PIGEAU**

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION ALPES

Co-encadrant de thèse

Rapporteurs :

**CLAUDE FERMON**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CEA CENTRE DE PARIS-SACLAY

**DANIEL LACOUR**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION CENTRE-EST

Thèse soutenue publiquement le **17 avril 2024**, devant le jury composé de :

**CLAUDE FERMON,**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CEA CENTRE DE PARIS-SACLAY

Président

**DANIEL LACOUR,**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION CENTRE-EST

Rapporteur

**CHRISTIAN DEGEN,**

FULL PROFESSOR, ECOLE POLYTECHNIQUE FEDERALE DE ZURICH

Examineur

**AUORE FINCO,**

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION OCCITANIE EST

Examinatrice

**HELENE BEA,**

MAITRESSE DE CONFERENCES HDR, UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Examinatrice

Invités :

**ISABELLE JOUMARD**

INGENIEURE DE RECHERCHE, CEA CENTRE DE GRENOBLE

**BENJAMIN PIGEAU**

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS DELEGATION ALPES



# RÉSUMÉ

---

La compréhension fine de la dynamique magnétique dans les nano-objets revêt un intérêt stratégique pour les technologies de l'information. Les caractéristiques recherchées sont les propriétés spectroscopiques des modes propres, leurs profils de précession, les effets non-linéaires et la compréhension fondamentale des processus de relaxation. Bien qu'il existe une large panoplie d'outils capables de mesurer le profil spatio-temporelle des ondes de spin, aucun actuellement ne peut le faire sans sacrifier un paramètre que ce soit dans la gamme de fréquence, la gamme de champ, la résolution spatiale, la perturbation de la texture d'équilibre, la sensibilité ou la précision. La récente découverte qu'il était possible de détecter optiquement la résonance paramagnétique électronique (RPE) d'une paire lacune-azote unique dans du diamant a changé radicalement ce paysage. Néanmoins l'utilisation d'un champ magnétique appliqué reste une difficulté car il doit être précis à la fois en amplitude et en direction. Afin d'adresser ce dernier problème, l'objet de ma thèse a été de développer un microscope à centre NV qui puisse s'insérer entre les pôles d'un électro-aimant ultra-stable et orientable. Ce projet s'inscrit dans une collaboration entre Spintec et l'Institut Néel. L'outil proposé repose sur la spectroscopie optique d'un défaut coloré qui permet, grâce à son triplet électronique, une modulation du taux de fluorescence par la résonance paramagnétique de son spin. Lorsque ce défaut est inséré dans un nano-diamant monté au bout d'une pointe de microscope en champ, il permet de faire de la cartographie des perturbations du spectre RPE. L'objet de ma thèse a été de développer un microscope à centre NV fonctionnant dans un électro-aimant dont l'alimentation est asservie sur une sonde RMN pour offrir un contrôle précis du champ. Ce choix impose des contraintes significatives sur l'espace disponible pour les différents sous-systèmes instrumentaux, nécessitant de nombreuses optimisations. Un résultat majeur de ce travail a été de relever le défi de l'encombrement, incompatible avec les optiques de focalisation haute performance disponibles. Les optiques requises pour l'excitation et la capture de la fluorescence d'un centre NV unique doivent allier une grande ouverture numérique, une transmission optique élevée, et une achromaticité optimale. Nous proposons un nouveau type de dispositif optique, basé sur un système réflectif purement achromatique, constitué de quatre surfaces axisymétriques, dont deux sont basées sur des définitions coniques focales – une parabole et une ellipse partageant un point focal commun. Ce développement a fait l'objet de deux brevets. Parallèlement, un système de microscopie NV sur table optique a été mis en place pour faciliter le développement des protocoles de mesure sans les contraintes d'espace liées à l'utilisation d'un électro-aimant. Ce dispositif permet des mesures directes sur les centres NV et sur des échantillons, incorporant un circuit optique confocal de haute performance, des instruments de micro-onde, des actionneurs de précision, et des dispositifs pour des mesures temporelles exactes. Cet équipement a rendu possible l'élaboration et l'application de protocoles pour caractériser les centres NV dans des pointes AFM, permettant l'analyse précise de leurs propriétés telles que leurs orientations ou leurs fréquences Rabi. De plus, il a permis les premières mesures de magnétométrie sur des échantillons, grâce à la technique d'extinction de fluorescence, confirmant la capacité du système à créer des cartographies magnétiques. Les ambitions futures du projet incluent la finalisation de protocoles de mesure avancés, basés sur des séquences pulsées pour l'étude des ondes de spin dans des échantillons via la magnétométrie NV. Ces protocoles seront initialement déployés sur le microscope NV sur table optique, avec l'objectif d'une extension rapide aux capacités du microscope fonctionnant sous un champ magnétique ultra-stable.

---

## *Version courte*

La thèse explore le développement d'un microscope innovant utilisant des "centres NV" dans les diamants pour étudier de minuscules structures magnétiques. Ces centres NV, des défauts atomiques dans le diamant, brillent différemment selon les champs magnétiques environnants, permettant de cartographier des textures magnétiques à l'échelle microscopique. Cette technique est particulièrement utile pour étudier des matériaux spéciaux comme le YIG, utilisés dans des dispositifs magnétiques avancés. La thèse a également mené à la création d'une optique spéciale, adaptée à ces microscopes, pour surmonter les limitations d'espace et améliorer la qualité des images obtenues. Ce travail ouvre la voie à des avancées significatives dans la compréhension et la manipulation des phénomènes magnétiques à l'échelle microscopique.

# ABSTRACT

---

A nuanced understanding of magnetic dynamics within nano-objects holds strategic significance for information technology applications. Sought-after characteristics include the spectroscopic properties of inherent modes, their precession profiles, non-linear effects, and a foundational comprehension of relaxation processes. Despite the availability of numerous tools for measuring the spatio-temporal profiles of spin waves, none can currently achieve this without compromising on some aspect, whether it be frequency range, field intensity, spatial resolution, perturbation of equilibrium texture, sensitivity, or accuracy. The breakthrough ability to optically detect the paramagnetic resonance of a single nitrogen-vacancy (NV) pair in diamond has dramatically transformed this field. Yet, the employment of an applied magnetic field presents challenges, necessitating precision in both amplitude and orientation. To tackle this challenge, my thesis focused on developing an NV center microscope that fits between the poles of an ultra-stable and adjustable electromagnet. This initiative is a collaboration between Spintec and the Institut Néel. The tool developed leverages optical spectroscopy of a color defect, which, through its electronic triplet, modulates the fluorescence rate by the paramagnetic resonance of its spin. When this defect is incorporated into a nano-diamond affixed to a near-field microscope tip, it enables mapping the EPR spectrum perturbations. A principal objective of my thesis was to construct an NV center microscope operational within an electromagnet, controlled by an NMR probe for precise field regulation. This approach introduced significant space constraints for the various instrumental subsystems, demanding extensive optimizations. Overcoming the spatial limitation challenge, incompatible with the available high-performance focusing optics, was a significant achievement. The required optics for the excitation and detection of fluorescence from a singular NV center must marry a large numerical aperture, high optical transmission, and superior achromaticity. We introduced a novel optical apparatus, rooted in a purely achromatic reflective design, composed of four axisymmetric surfaces, including two focal conic elements – a parabola and an ellipse sharing a focal point. This invention has been patented. Concurrently, an NV microscopy setup on an optical bench was established to expedite the development of measurement protocols free from the spatial restrictions of electromagnet usage. This setup permits direct assessments on NV centers and specimens, integrating a high-performance confocal optical circuit, microwave instrumentation, precision actuators, and timing-accurate devices. This apparatus enabled the formulation and implementation of protocols to characterize NV centers in AFM tips, precisely analyzing their properties, such as orientations or Rabi frequencies. Moreover, it facilitated initial magnetometry assessments on samples through the fluorescence quenching method, validating the system's capacity for producing magnetic mappings. The project's forthcoming goals encompass the refinement of sophisticated measurement protocols employing pulsed sequences to investigate spin waves in samples via NV magnetometry. These methodologies will first be applied using the optical table NV microscope, aiming for swift expansion to the functionalities of the microscope operating within an ultra-stable magnetic field.

*Short version*

---

The thesis explores the development of an innovative microscope using 'NV centres' in diamonds to study tiny magnetic structures. These NV centres, atomic defects in diamonds, glow differently depending on the surrounding magnetic fields, allowing magnetic textures to be mapped on a microscopic scale. This technique is particularly useful for studying special materials such as YIG, used in advanced magnetic devices. The thesis also led to the creation of special optics, adapted to these microscopes, to overcome space limitations and improve the quality of the images obtained. This work paves the way for significant advances in the understanding and manipulation of magnetic phenomena at the microscopic scale.

# REMERCIEMENTS

---

La réalisation d'une thèse est un parcours jalonné de collaborations et d'échanges enrichissants, non seulement avec des experts du domaine, mais aussi grâce aux contributions de travaux antérieurs et parallèles d'autres équipes de recherche. Il est donc essentiel de reconnaître et de remercier toutes les personnes qui ont rendu possible l'aboutissement de ces travaux.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mes directeurs de thèse, le Dr Olivier Klein et le Dr Benjamin Pigeau. Leur encadrement a été déterminant dans ma première incursion dans le monde de la recherche scientifique et a façonné ma manière de conduire une démarche scientifique rigoureuse. La chance qu'ils m'ont donnée de participer à un projet aussi ambitieux a été une expérience incroyable, pour laquelle je leur suis infiniment reconnaissant. Leur expertise et leur savoir dans divers domaines de la physique expérimentale ont été une source d'enrichissement personnel considérable durant ces années.

Un remerciement particulier va au Dr Isabelle Joumard, responsable instrumentation au laboratoire SPINTEC, dont le soutien a été crucial. Il y a quatre ans, elle m'a offert une opportunité en or en acceptant ma candidature en tant qu'ingénieur de recherche en alternance, ouvrant ainsi les portes de la recherche scientifique pour moi.

Je remercie également la direction du laboratoire SPINTEC, le Dr Lucian Prejbeanu et le Dr Olivier Fruchart, pour m'avoir accueilli dans cette passionnante aventure de recherche.

Je suis également reconnaissant envers de nombreux collègues au sein du laboratoire, dont M. Nicolas Mollard et M. Eyub Yildiz, pour leur aide technique quotidienne, et à M. Michel Boujard pour son expertise en mécanique de précision.

Je tiens à rendre hommage au Dr Vladimir Naletov, dont la contribution au début du projet a été inestimable, mais dont la réintégration a été entravée par la situation géopolitique actuelle.

Un grand merci également à Dr Olivier Arcizet et M Laurent Del-Rey de l'Institut Néel pour leurs échanges fructueux et leur assistance précieuse.

Je suis reconnaissant envers la Fondation Nanosciences et LANEF pour leur confiance et le financement de cette thèse.

Je tiens à exprimer ma sincère gratitude envers les différentes équipes externes à SPINTEC et à l'Institut Néel, qui m'ont ouvert les portes de leurs laboratoires, me permettant ainsi de bénéficier de leur expertise. Je suis particulièrement reconnaissant aux équipes du Laboratoire Charles Coulomb de l'Université de Montpellier, en particulier au Dr Aurore Finco et au Dr Vincent Jacques, pour leur accueil chaleureux et leur partage de connaissances. Mes remerciements s'étendent également aux équipes de l'ETH Zurich, et en particulier au Dr Christian Degen, ainsi qu'aux chercheurs de l'Université de Bâle, sous la direction du Dr Patrick Maletinsky. Leur contribution à ma compréhension du domaine de la magnétométrie NV a été inestimable. Je tiens aussi à remercier chaleureusement le Dr Grégoire De Loubens et le Dr Jamal Benyoussef pour leur aide et leur soutien précieux tout au long de ce projet. Leur expertise et leur disponibilité ont grandement contribué à l'avancement de mes travaux.

Je souhaite également mettre en lumière l'apport crucial de divers professionnels issus du secteur industriel à ce projet. Mes remerciements vont à M. Steve Travel, M. Louis Bernot et M. Cédric Germain de la société Caylar, dont l'expertise et le soutien concernant le système d'électro-aimant ont été déterminants. De même, je tiens à remercier chaleureusement le Dr Maikel Hernandez et M. Daniel Mouricaud de la société SAVIMEX

---

pour leur savoir-faire en optique, qui a grandement enrichi notre projet. En outre, la contribution technique du Dr Emilio Depero et du Dr Romain Stomp de Zurich Instruments a été essentielle, et je leur suis profondément reconnaissant pour leur assistance et leur expertise.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mes collègues, les Drs Charles-Elie Fillion, Jérôme Hurst, Silvain Moulis, Stéphane Tawil, Apoorva Sharma, Richard Schlitz, ainsi que M. Bastien Anezo, pour avoir partagé ce voyage de thèse avec moi. Leurs contributions, leurs perspectives et leur soutien ont été inestimables tout au long de ce parcours académique. Leur camaraderie et leur esprit de collaboration ont enrichi tant ma recherche que mon expérience personnelle, et pour cela, je leur suis extrêmement reconnaissant.

Pour conclure, je tiens à adresser une reconnaissance toute particulière à Mme Nathalie Richard, dont le soutien indéfectible au quotidien et l'assistance dans la relecture de ce manuscrit ont été inestimables. Je tiens aussi à remercier mes proches, amis et famille qui m'ont soutenu durant ces dernières années, même si celles-ci ont malheureusement été aussi le lieu d'évènements graves et parfois dramatiques dans le cadre extra-professionnel. Ce soutien a joué un rôle crucial, car la recherche est avant tout une entreprise humaine, influencée par le contexte personnel de chaque chercheur. Leur encouragement et leur présence m'ont été essentiels. Merci à tous pour votre soutien infailible.



# CONTENTS

---

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Le centre NV, un magnétomètre moléculaire : bases théoriques</b>	<b>5</b>
1.1 Introduction . . . . .	5
1.2 Propriétés des centres NV . . . . .	5
1.2.1 Structure électronique et transitions optiques . . . . .	6
1.2.2 Résonance paramagnétique électronique . . . . .	8
1.2.3 Relaxation de l'état de spin . . . . .	9
1.3 Magnétométrie de champs statique . . . . .	13
1.3.1 Magnétométrie de champs "faibles" . . . . .	13
1.3.2 Magnétométrie de champs "forts" . . . . .	17
1.3.3 Magnétométrie par extinction de fluorescence . . . . .	18
1.4 Conclusion . . . . .	19
<b>2 Réalisation d'un microscope à Centre NV sur table optique</b>	<b>21</b>
2.1 Introduction . . . . .	21
2.2 Architecture du microscope a centre NV . . . . .	21
2.2.1 Système optique confocal . . . . .	22
2.2.2 circuit micro-onde . . . . .	26
2.2.3 application d'un champ de magnétique . . . . .	28
2.2.4 implémentation de l'AFM . . . . .	30
2.2.5 système instrumental complet . . . . .	32
2.2.6 protocoles et méthodologies de mesures . . . . .	38
2.3 Imagerie magnétique par extinction de fluorescence . . . . .	47
2.3.1 Imagerie de test sur disque-dur . . . . .	47
2.3.2 Imagerie de film mince de YIG . . . . .	49
2.4 Imagerie magnétique par mesure RPE . . . . .	50
2.5 Conclusion . . . . .	53
<b>3 Développement d'une optique de focalisation catoptrique</b>	<b>55</b>
3.1 Introduction et problématique . . . . .	55
3.2 Techniques de focalisation et état de l'art . . . . .	57
3.2.1 Optiques dioptriques . . . . .	57
3.2.2 Optiques Catoptriques . . . . .	61
3.3 Conception reflexicones . . . . .	63
3.3.1 Principes fondamentaux . . . . .	64
3.3.2 Faisabilité et réalisation matérielle . . . . .	66
3.3.3 Optimisations pour l'imagerie . . . . .	71
3.4 Conclusion . . . . .	81
<b>4 Réalisation d'un microscope à Centres NV sous champ magnétique ultra-stable</b>	<b>83</b>
4.1 Introduction . . . . .	83
4.2 Architecture du microscope à centre NV . . . . .	84
4.2.1 Electroaimant . . . . .	84

4.2.2	Microscope . . . . .	87
4.2.3	Contraintes associées . . . . .	89
4.3	Développements expérimentaux . . . . .	89
4.3.1	Systèmes optiques . . . . .	90
4.3.2	Développements radiofréquences . . . . .	94
4.3.3	Développements mécaniques . . . . .	95
4.4	Conclusion . . . . .	96
<b>5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>97</b>
5.1	Conclusion générale . . . . .	97
5.2	Contributions personnelles . . . . .	99
5.3	Remarques sur les outils numériques . . . . .	100
<b>A</b>	<b>Systèmes de mesures développés</b>	<b>103</b>
A.1	Amplificateur de distribution . . . . .	103
A.2	Amplificateur transimpédance . . . . .	105
A.3	Sommateur analogique . . . . .	106
A.4	Boxcar averager . . . . .	108
A.5	Alimentations multirails . . . . .	110
	<b>Bibliographie</b>	<b>112</b>

# INTRODUCTION

---

La capacité de détection et de cartographie des textures magnétiques statiques et dynamiques à l'échelle nanométrique est resté pendant une longue période la capacité quasi-exclusive de méthodes de microscopies en champ proche tel que les microscopes à force magnétique (MFM) et leurs cousins, les microscopes à force de résonance magnétique (MRFM). Pourtant des mesures de magnétométrie sensible et de grandes résolutions spatiales sont cruciales dans un grand nombre de domaines scientifiques.

Il est par exemple crucial pour des domaines tel que la spintronique ou la microélectronique de pouvoir caractériser les phénomènes magnétiques à l'échelle nanométrique. Certaines voies émergentes tel que les nanostructures magnétiques stabilisées par topologies sont même conditionnées à ce type d'études. De plus, un grand nombre de champs autres que les domaines applicatifs et technologique amont sont aussi concernés par le besoin de capacités de caractérisation fine et résolution du magnétisme. Il s'agit en fait d'un sous-domaine commun à beaucoup de disciplines scientifique, sans être exhaustif, nous pouvons aborder la biologie avec les défis des études sur les courants neuronaux (ref sur les micro courants cérébraux), les études sur les protéines ou des domaines extrêmement éloignés tel que les géosciences (ref sur les paléomagnétisme).

Cependant, l'éventail des techniques disponibles aux chercheurs et chercheuses jusque dans les années 2010 étaient confrontés à certaines problématiques.

En effet, d'un côté du spectre, nous avons à notre disposition une technique d'une extrême sensibilité que sont les SQUID, de l'anglais Superconducting QUantum Interference Device, qui sont des systèmes basés sur une paire de jonction de Josephson montées dans une boucle supraconductrice. Ces systèmes SQUID présentent une extrême sensibilité au champ magnétique ( $\sim 1\text{pT}$ ), cependant leur taille étant de l'ordre du micron dans le meilleur des cas, leur capacité de résolution spatiale reste dans des grandeurs micrométriques. Bien que des efforts considérables ont été et sont encore fait aujourd'hui pour dépasser ce plancher de résolution avec l'avènement des microscope à force atomique (AFM, Atomic Force Microscope) à nanoSQUID intégrés [1], les microscopes SQUID présentent une seconde limitation intrinsèque, l'obligation de fonctionner à des températures cryogéniques.

A l'opposé, les techniques de MFM permettent elles d'atteindre des résolutions spatiales extrêmes ( $\sim 10\text{nm}$ ), [2, 3]. Mais les limitations de ces techniques sont dans un premier temps leurs sensibilités ( $\sim \text{mT}$ ), et leur capacité à venir perturber le magnétisme de l'échantillon par la mesure. En effet, leurs architectures peuvent être grossièrement résumées à un levier AFM avec une particule magnétique à son extrémité. Cependant, cette particule reste dans le domaine de la centaine de nm de diamètre et représente alors un nombre importants d'atomes magnétique venant perturber l'échantillon.

Depuis les année 2010 des techniques de microscopie en champ proche utilisant des nanodiamants comme capteurs magnétiques ont permis de combler certaines lacunes dans le panel de techniques de magnétométries résolus spatialement. Ces nanodiamants présente un défaut ponctuel spécifique composé d'un atome d'azote et d'une lacune. Il s'agit en fait d'une substitution de deux atomes de carbones adjacents par cet azote (Nitrogen) et cette lacune (Vacancy). Ce centre azote-lacune, nommé NV pour Nitrogen-vacancy, peut alors capturer un électron supplémentaire et devenir un centre NV<sup>-</sup>, simplement appelé NV dans la suite de ce document, et se comporter comme un atome artificiel dont l'état fondamental est un spin  $S = 1$ . En quantifiant les changements d'énergie des états de spin suite à l'influence d'un champ magnétique par l'effet Zeeman, il est possible d'utiliser

un spin électronique en tant que magnétomètre à l'échelle atomique. Il est important de noter que la détection du spin individuel du centre NV se fait optiquement et nécessite alors des systèmes optiques de très haute performances, ce point est d'autant plus critique que la quantité de signal optique fournie par le centre NV est faible. Plus tard dans ce document nous verrons que parvenir à des optiques compatibles avec l'étude des spin individuel n'est pas trivial et est un défi en soi.

Cette approche donne naissance à une méthode de microscopie champ proche, utilisée pour positionner le spin au-dessus de l'échantillon, permettant ainsi de cartographier son champ magnétique. Ce type novateur de microscope à champ magnétique fusionne les avantages des magnétomètres de dimension atomique – tels que la sensibilité élevée, les mesures quantitatives et non invasives – avec une résolution spatiale à l'échelle nanométrique.

Depuis l'avènement de cette technique, les progrès dans la mise en œuvre de la magnétométrie et de la microscopie NV ont été fulgurants. Des entreprises spécialisées dans le domaine ont émergé (Qnami, QZabre) et les techniques et protocoles de mesures se sont raffinés jusqu'à la mise en application de la microscopie NV dans des domaines variés tels que la biologie ou les géosciences.

Cependant certaines études sur les textures magnétiques dynamiques aux échelles micro et nanométrique n'ont pas encore été effectuées avec les centres NV. En effet certaines limitations intrinsèques des centres NV rendent complexe la mise en œuvre de mesures de cartographies et spectroscopies quantitative pour des échantillons nécessitant l'application de champs magnétiques externe ultra-stable. Depuis 2019, notre équipe s'attelle à mettre en œuvre un microscope à centre NV pouvant travailler sous champ externe ultra-stable afin de réaliser des mesures de spectroscopies d'ondes de spin sur matériaux à très faible amortissement magnétique.

Ce document décrira le travail que j'ai réalisé durant cette thèse afin de parvenir à un tel instrument. Il s'agit ici d'une thèse d'instrumentation, principalement axée autour des développements instrumentaux donnant axée à la physique que l'on souhaite étudier. Cela implique alors d'explicitier en premier lieu quelle sont les contraintes que les phénomènes à étudier imposent sur la conception de l'instrument et d'ensuite expliciter les choix effectués pour atteindre les performances escomptées. Dans le cadre de ce projet de thèse, les contraintes furent telles que le choix de réaliser plusieurs instruments en parallèles a été fait. Le but de cette démarche est de pouvoir réaliser une version simplifiée du système pour pouvoir y tester les protocoles et sous-systèmes sans attendre la convergence de tous les développements.

De ce fait la structure de ce rapport rendra compte de ces procédures de développement, ce manuscrit est composé de quatre chapitres:

- *Chapitre 1* Nous commencerons dans un premier temps par une partie de mise en place de la physique des centres NV et des techniques de magnétométries en découlant. Nous rappellerons la structure des centres NV, leurs propriétés optiques et les protocoles de mesure, notamment de résonances paramagnétiques électroniques employés.
- *Chapitre 2* Dans la seconde partie nous mettrons en perspective les propriétés des centres NV au regards d'un processus de réalisation d'un microscope basé sur ceux-ci entièrement conçu et fabriqué au laboratoire. Ce microscope est une version simplifiée du microscope final de ce projet. Mais l'étude de sa conception nous

permet de comprendre en profondeur le fonctionnement de ce type d'instrument de mesure et des contraintes de conception inhérente à la microscopie en champ proche et à l'utilisation des centres NV. Il est important de noter que nous aborderons ici la conception d'un tel instrument mais aussi des mesures et résultats de mesures qui ont été effectuées avec celui-ci. En effet, une partie très importante du travail de mesure des textures magnétiques statique a été réalisé avec ce microscope.

- *Chapitre 3* La troisième partie décrira en profondeur un aspect très important du travail réalisé durant cette thèse, la conception d'une optique de focalisation très haute performance pour la microscopie à centre NV. Il s'agit d'un développement annexe ayant pris une place majeure dans ce travail de thèse au regards de sa criticité dans le projet global mais aussi vis-à-vis de l'avant-gardisme qu'il présente. Nous entrerons dans le détail du travail de conception d'une lentille de microscopie achromatique, compacte et de forte ouverture numérique d'une conception nouvelle.
- *Chapitre 4* Enfin, la quatrième et dernière partie décrira les spécificités du microscope « final » de notre projet et les contraintes en découlant. Nous aborderons dans un premier temps les raisons des choix de conception initiaux au regard des études visées par l'instrument. Puis nous aborderons en détails les contraintes en découlant et les choix réalisés pour les surmonter.



# LE CENTRE NV, UN MAGNÉTOMÈTRE MOLÉCULAIRE : BASES THÉORIQUES

---

## 1.1 Introduction

Ce projet de thèse se focalise sur l'utilisation des centres NV pour réaliser de la magnéto-métrie à haute résolution spatiale. Le premier chapitre de ce manuscrit débutera par une exploration des propriétés physiques des centres NV. Nous examinerons ensuite les méthodes de mesure des structures magnétiques statiques, avant de nous pencher sur les techniques permettant d'étudier les structures magnétiques dynamiques. Pour approfondir l'analyse de ces propriétés et des méthodologies de mesure, cette section s'appuiera des travaux de référence dans le domaine, et tout particulièrement du manuscrit de thèse de Jean-Philippe Tetienne constituant une pierre angulaire de la présentation des techniques NV pour la communauté [4].

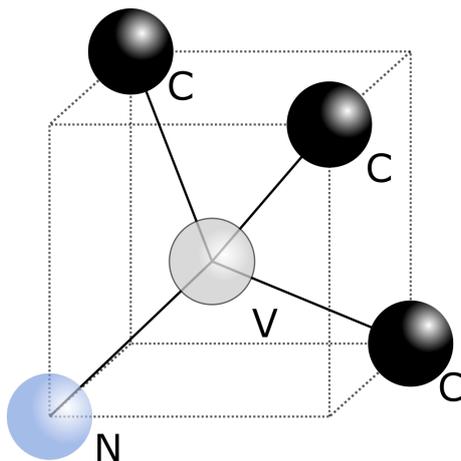
Dans cette dernière section, nous approfondirons la physique des structures dynamiques spécifiques, telles que les ondes de spin dans les disques de YIG (Yttrium Iron Garnet). Cette analyse détaillée permettra de mieux comprendre les interactions complexes et les phénomènes sous-jacents associés à ces structures magnétiques dynamiques.

## 1.2 Propriétés des centres NV

Depuis une dizaine d'années, l'étude des défauts colorés s'est imposée comme un domaine de recherche particulièrement dynamique. Au cœur de ce champ d'étude se trouve l'analyse approfondie des centres NV et de leurs multiples applications.

Le centre NV, un défaut intrinsèque du diamant connu depuis de nombreuses années [5], est constitué d'un atome d'azote et d'une lacune (Nitrogen-Vacancy) remplaçant deux atomes de carbone dans la structure cristalline du diamant, comme schématisé figure 1. Ce défaut, situé énergétiquement dans la bande interdite du diamant se présente sous une forme  $NV^0$  neutre et peut capter un électron supplémentaire, produisant la forme  $NV^-$  qui possède une structure électronique intéressante pour la magnéto-métrie.

L'incorporation d'un centre NV dans une matrice de diamant ouvre la voie à des propriétés physiques exceptionnelles, essentielles tant pour son utilisation en optique quantique que pour leur application en magnéto-métrie [6]. Cette configuration unique permet des manipulations cohérentes du spin isolé du centre NV. Cette capacité est particulièrement cruciale pour les recherches sur les qubits à température ambiante, un domaine qui continue d'attirer une attention soutenue dans la communauté scientifique [7, 8].



**Figure 1:** *Structure atomique du centre NV dans la maille du diamant. Les sphères noires représentent les atomes de carbones, la bleu l'azote et la blanche la lacune.*

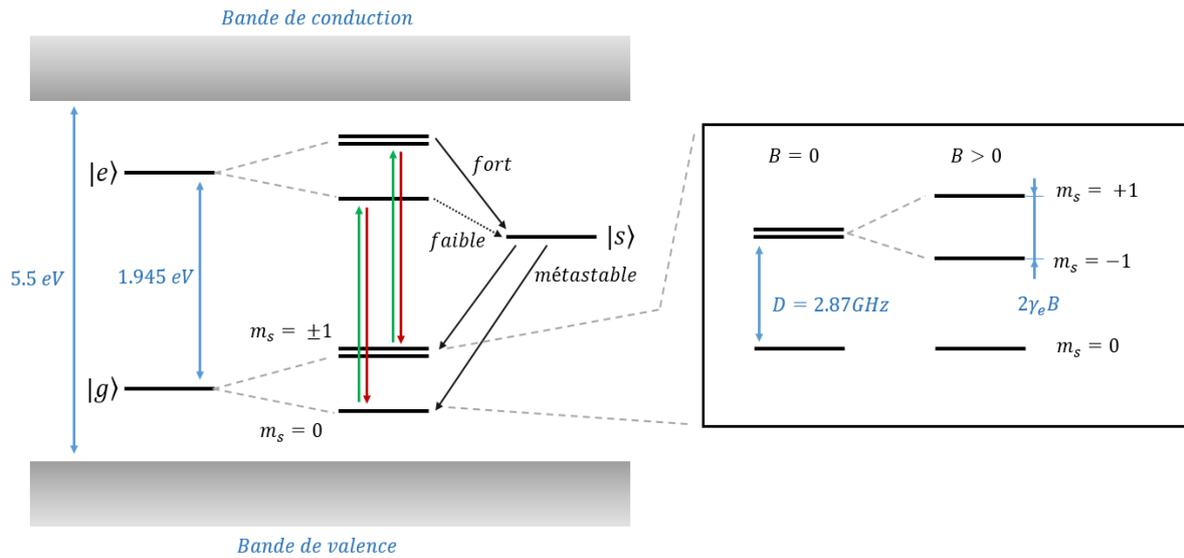
### 1.2.1 Structure électronique et transitions optiques

La structure électronique du centre NV dans le diamant se caractérise par un système à trois niveaux emprisonné entre la bande de valence et la bande de conduction du diamant. La structure fine des états fondamentaux et excités est un triplet de spin. Ce positionnement dans la bande interdite confère au centre NV une isolation remarquable au sein de la matrice de diamant, rendant ses propriétés fortement dépendantes des conditions physiques locales appliquées au système diamant/NV.

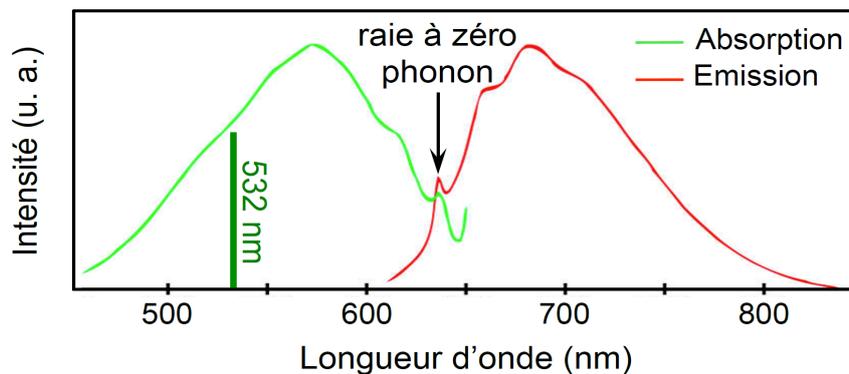
Le centre NV, tel qu'il est couramment décrit dans la littérature, correspond en réalité à une forme ionisée de ce défaut, où un électron supplémentaire est capturé. Cette configuration, avec six électrons dont quatre sont appariés [5], laisse deux électrons non appariés. Ces derniers peuvent occuper deux niveaux d'énergie distincts, l'un fondamental et l'autre excité, séparés par environ 1.945 eV, comme illustré dans la figure 2.

L'écart d'énergie de 1.945 eV au sein du centre NV correspond à une onde électromagnétique dans le spectre visible, précisément à une longueur d'onde de 637nm. Cette caractéristique est cruciale car elle va permettre l'excitation et l'observation optique de la transition d'un spin unique. Les centres NV peuvent être excités de manière non résonante par un laser, typiquement dans la gamme de 520 – 532nm, et leur fluorescence peut être mesurée quantitativement dans une plage spectrale allant de 620 à 800nm à l'aide d'une photodiode avalanche. De plus, la photoluminescence visible des centres NV est remarquablement stable face aux variations de température, ce qui est essentiel pour des études visant à détecter de faibles variations de fluorescence sous excitation externe [9].

L'analyse du spectre d'émission révèle que celui-ci n'est pas limité à une raie discrète à 637nm, mais est continue de 620 à 800nm, figure 3. Cette caractéristique est attribuable aux interactions électrons-phonons, qui provoquent un décalage de Stokes et, par conséquent, un élargissement du spectre de fluorescence à température ambiante [10]. Dans la plupart des études impliquant des centres NV, l'intérêt ne réside pas dans la structure détaillée du spectre de fluorescence, mais plutôt dans le niveau de fluorescence totale, celui-ci est alors accessible par l'intégration de ce spectre sur toute sa plage. Bien que cela puisse sembler un détail, cette propriété a une grande importance pratique dans la mesure de la fluorescence NV. Elle est notamment cruciale dans le choix des composants optiques en raison de la largeur du spectre de fluorescence, un aspect qui sera développé dans les chapitres suivants, notamment dans le chapitre 3.



**Figure 2:** Structure électronique d'un centre NV : À gauche, les états électroniques fondamentaux et excités, notés  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$ , se situent dans la bande interdite du diamant. Ces états ont trois sous-niveaux de spin :  $|m_s = 0\rangle$  et  $|m_s = \pm 1\rangle$ . La transition  $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$  est optiquement excitable. Le retour à l'état fondamental peut être soit radiatif, en conservant le spin, soit non radiatif par le biais de l'état intermédiaire  $|s\rangle$  métastable. Dans le cas non radiatif, le spin n'est pas conservé et aboutit toujours à l'état  $|m_s = 0\rangle$ , la probabilité de passage par l'état métastable étant forte pour l'état  $|m_s = \pm 1\rangle$ , le spin se retrouve rapidement polarisé à l'état  $|m_s = 0\rangle$  après illumination. À droite, en absence de champ magnétique, les états  $|m_s = +1\rangle$  et  $|m_s = -1\rangle$  sont dégénérés. L'introduction d'un champ magnétique lève cette dégénérescence, entraînant une séparation énergétique proportionnelle à l'intensité du champ le long de l'axe NV.



**Figure 3:** Spectres d'absorption et d'émission d'un centre NV, la courbe en vert représente l'intensité totale de fluorescence en fonction de la longueur d'onde d'excitation, tandis que la courbe en rouge montre le spectre de fluorescence résultant d'une excitation à 532 nm correspondant aux protocoles d'études standard des centres NV. Ces spectres d'absorption et d'émission du centre NV sont extraits de la référence [11].

## 1.2.2 Résonance paramagnétique électronique

Les transitions énergétiques au sein des centres NV impliquent deux triplet de spins, avec des sous-niveaux  $|ms = 0\rangle$  et  $|ms = \pm 1\rangle$  représentant respectivement les états antiparallèle et parallèle des spins électroniques. Les écarts énergétiques des levées de dégénérescences sont de 11.9  $\mu\text{eV}$  et 5.87  $\mu\text{eV}$  pour les niveaux fondamental et excité, correspondant à des photons dans les bandes micro-ondes S et L, avec des fréquences de 2.87 GHz et 1.42 GHz respectivement.

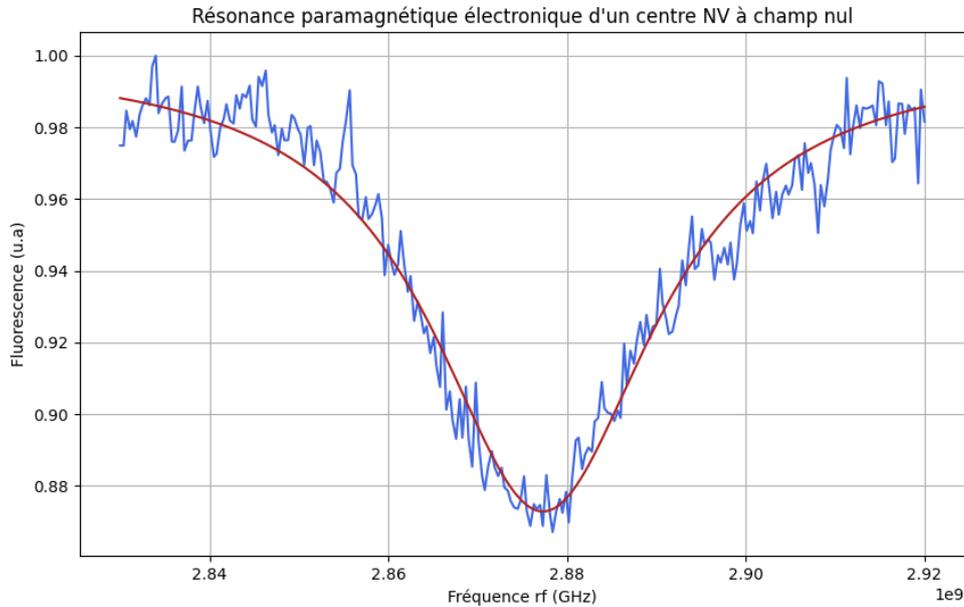
Une caractéristique remarquable des centres NV est leur capacité à se désexciter soit par émission radiative (photonique), soit par un processus non radiatif via un état métastable. Cet état métastable est souvent simplifié en un seul état dans la littérature pour faciliter les explications, une approximation qui ne modifie pas significativement les interprétations et résultats dans notre contexte. La probabilité d'emprunter le chemin de désexcitation non radiatif dépend de l'état initial du spin du centre NV, avec une probabilité plus élevée pour l'état  $|ms = \pm 1\rangle$ . En conséquence, les désexcitations de l'état  $|ms = \pm 1\rangle$  produisent moins de photons que celles de l'état  $|ms = 0\rangle$ . Cette propriété permet de sonder l'état de spin du centre NV par l'observation de la fluorescence, en particulier en mesurant le taux de fluorescence, c'est-à-dire le nombre de photons émis par seconde.

En outre, indépendamment de l'état initial du spin, l'application d'un signal d'excitation (typiquement une illumination laser d'environ 532nm) entraîne une désexcitation préférentielle des états  $|ms = \pm 1\rangle$  via un chemin non radiatif, aboutissant finalement à une polarisation du spin vers l'état  $|ms = 0\rangle$  après plusieurs cycles d'absorption-relaxation. Cette propriété permet la manipulation et la mesure de l'état de spin du centre NV de manière purement optique.

L'application d'une onde radiofréquence résonante avec la transition entre les états  $|ms = 0\rangle$  et  $|ms = \pm 1\rangle$  du centre NV est une méthode clé pour manipuler la population de spin. Cette technique permet de transférer la population de l'état  $|ms = 0\rangle$  vers l'état  $|ms = \pm 1\rangle$ , comme illustré figure 2. L'effet de cette transition peut être observé par une diminution de la fluorescence du centre NV lorsqu'il est soumis à une illumination constante.

Cette méthode s'apparente à la résonance paramagnétique électronique (RPE) spécifique aux centres NV, avec la particularité que la résonance est détectée optiquement (ODMR, Optical Detection of Magnetic Resonance). Pour mettre en œuvre cette technique, le centre NV est exposé à une illumination laser constante, tout en lui appliquant une radiofréquence proche de la fréquence de transition des spins. En balayant la fréquence des micro-ondes et en moyennant le taux de fluorescence, on observe un pic caractéristique de diminution de la fluorescence, correspondant à la transition  $|ms = 0\rangle$  vers  $|ms = \pm 1\rangle$ , la figure 4 montre la réponse typique d'un nanodiamant avec un centre NV unique. Ce phénomène est un indicateur direct de la résonance magnétique du centre NV [9].

Dans la section 1.3, nous explorerons en détail comment les propriétés fines des centres NV, couplées à l'effet Zeeman, sont utilisées dans le cadre de la magnétométrie. Les techniques ODMR jouent un rôle crucial dans ce processus, permettant de sonder et de mesurer les champs magnétiques avec une grande précision.



**Figure 4:** *Mesure typique de spectre de résonance RPE d'un centre NV unique dans un nanodiamant à champ nul. Le pic d'extinction est à  $D \approx 2.88$  GHz correspond à la transition entre  $|ms = 0\rangle$  et  $|ms = \pm 1\rangle$  du niveau fondamental. Dans le cas présent, le contraste est d'environ 13% avec une largeur de raie (Largeur à mi hauteur) de  $FWHM \approx 15.2$  MHz. Ici les données sont en bleu et l'ajustement Lorentzien en rouge.*

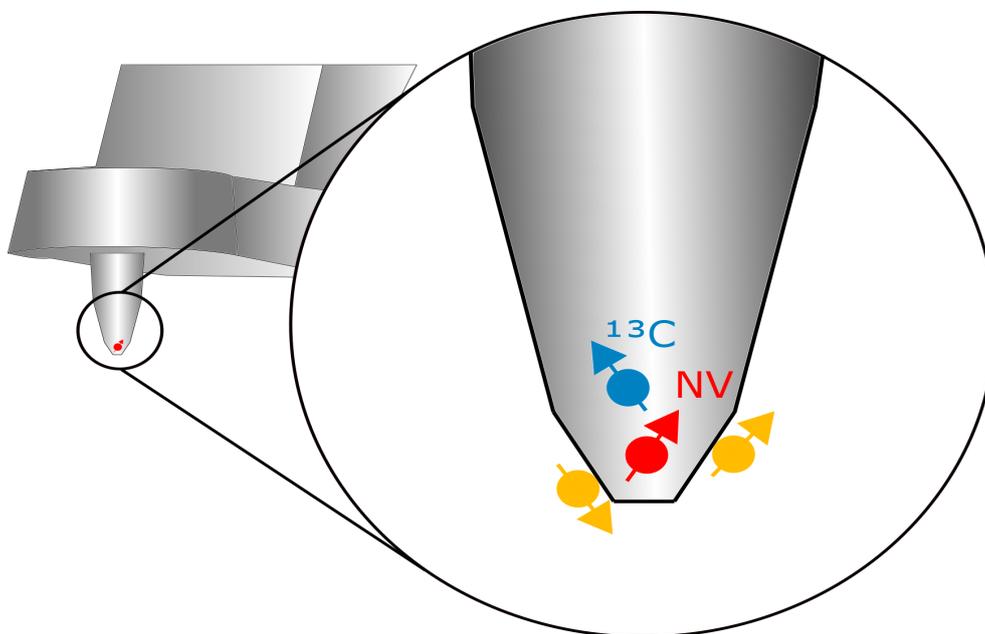
### 1.2.3 Relaxation de l'état de spin

Le spin des centres NV se distinguent par des caractéristiques notables, notamment leurs temps de relaxation longitudinale  $T_1$  et leurs temps de relaxation transversale  $T_2$  et  $T_2^*$ , qui sont particulièrement longs par rapport à d'autres structures potentielles pour les qubits en informatique quantique [12]. Le temps  $T_1$  représente la durée nécessaire pour qu'un spin, initialement préparé dans l'état  $|ms = 0\rangle$ , revienne à l'équilibre thermodynamique. Ce temps de vie du centre NV est influencé par les interactions spin-réseau sous formes de phonons et est typiquement de l'ordre de la milliseconde à température ambiante dans un diamant massif [13].

En complément, les temps  $T_2$  et  $T_2^*$  décrivent la durée de cohérence du spin, c'est-à-dire le temps avant que les états  $|ms = 0\rangle$  et  $|ms = \pm 1\rangle$ , en superposition initiale, ne retournent à un mélange statistique. Dans le cas du  $T_2^*$ , qui est le temps de relaxation transversale effective, on prends alors en compte à la fois les interactions internes et les perturbations externes qui contribuent à la décohérence des spins. Ce dernier point implique généralement que  $T_2^*$  est inférieur à  $T_2$ . Ces temps sont principalement influencés par le couplage spin-spin du centre NV avec des impuretés paramagnétiques ainsi que le bain de spins nucléaires environnants, telles que le  $^{13}\text{C}$  de spin nucléaire  $\frac{1}{2}$  et les deux isotopes stables de l'azote de spin 1 pour  $^{14}\text{N}$  et  $\frac{1}{2}$  pour  $^{15}\text{N}$ .

Les facteurs clés affectant négativement les temps de vie du centre NV incluent la pureté de la matrice de diamant et la proximité du centre NV avec la surface du diamant. L'abondance isotopique naturelle du  $^{13}\text{C}$  de 1.1% dans le diamant peut être réduite par synthèse, augmentant ainsi l'abondance du  $^{12}\text{C}$  jusqu'à 99.999%, limitant de ce fait l'impact de ce paramètre [14].

Cependant, dans le cadre de la magnétométrie NV on a tout intérêt à positionner le centre NV au plus près de l'échantillon à analyser. Mais le fait de diminuer la profondeur d'implantation des NV va alors les rendre plus sensibles aux bruits magnétiques provenant de centres paramagnétiques situés sur la surface du diamant [15, 16], comme illustré figure 5.



**Figure 5:** Le schéma illustre une pointe AFM-NV, avec un focus sur l'extrémité de la pointe pour souligner la position d'un centre NV unique et sa proximité avec d'autres spins susceptibles de l'influencer. Bien que ces représentations ne soient pas à l'échelle, elles mettent en évidence la présence de spins dans le diamant (représentés en bleu) et donc dans la pointe, pouvant affecter les propriétés du centre NV (indiqué en rouge). Ces spins sont principalement les spins nucléaires du  $^{13}\text{C}$ , du  $^{15}\text{N}$  et du  $^{14}\text{N}$ . De plus, des spins provenant de divers types de composés situés à la surface du diamant (illustrés en jaune) peuvent également interagir avec le centre NV. Enfin, le centre NV est souvent positionné très près de la surface du diamant, typiquement à environ 10 nm. Cette proximité place le centre NV dans une situation où la maille cristalline du diamant est soumise à des tensions de surface. Ces contraintes peuvent influencer et modifier les propriétés intrinsèques du centre NV, notamment en termes de déformation cristalline et d'interactions avec les spins de surface.

Dans le cadre de ce projet, un centre NV unique est intégré dans une pointe de dimensions microscopiques pour permettre la réalisation de microscopie en champ proche de type AFM (Atomic Force microscopy). Le système sera décrit plus en détail dans le chapitre 2, mais il se compose essentiellement d'une structure en diamant micrométrique avec une pointe, elle aussi en diamant, de quelques centaines de nanomètres de diamètre à son extrémité. Cette dernière facilite l'excitation du centre NV et la capture de sa fluorescence. La structure est fixée à un levier de taille millimétrique, lui-même attaché à un résonateur électromécanique en quartz, semblable à un diapason. L'analyse de la résonance de ce diapason, combinée à l'utilisation de systèmes d'actionneurs piézoélectriques de précision, permet de réaliser des mesures topographiques de très haute précision. Associées aux propriétés du centre NV, ces mesures ajoutent des capacités de magnétométrie spatialement résolues et précises.

Les pointes AFM utilisées ont typiquement un centre NV implanté à environ 10 nm de profondeur, offrant des temps de vie comparables à ceux des nanodiamants à température ambiante :  $T_1$  entre 10 et 100  $\mu\text{s}$ ,  $T_2$  entre 1 et 10  $\mu\text{s}$ , et  $T_2^*$  de l'ordre de la microseconde [16–18].

Il est important de souligner que, sous certaines conditions et dans d'autres applications, les temps de vie des centres NV peuvent être considérablement prolongés. Par exemple, les centres NV situés dans des diamants massifs et éloignés de leur surface peuvent afficher des temps  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_2^*$  respectivement de l'ordre de 1 ms, 10  $\mu\text{s}$  et 100  $\mu\text{s}$  à température ambiante. Des records ont même été établis avec des temps de 100 s pour  $T_1$  à 4 K, 0.5 s pour  $T_2$  à 77 K et 500  $\mu\text{s}$  pour  $T_2^*$  dans des diamants enrichis en  $^{12}\text{C}$  [13, 19, 20].

Contrairement aux techniques traditionnelles de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) utilisant une détection inductive du champ rayonné par les spins, les temps  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_2^*$  des centres NV peuvent être déterminés par des méthodes optiques. Des protocoles pulsés optiques sont utilisés pour sonder les propriétés de spin du NV.

Pour mesurer  $T_1$ , le protocole débute par une initialisation de l'état  $|ms = 0\rangle$  à l'aide d'une impulsion laser de polarisation. Après un intervalle de temps  $\tau$ , dont la durée varie, une seconde impulsion laser est appliquée pour lire l'état du spin du NV, comme illustré figure 6 (a). Étant donné que le signal de fluorescence du centre NV est relativement faible, il est nécessaire de répéter cette séquence de nombreuses fois pour obtenir des données statistiquement significatives. Le nombre de cycles requis est typiquement de l'ordre de  $10^7$ .

Ce protocole, que nous désignerons par "protocole  $T_1$ " dans la suite de ce rapport, permet de tracer la polarisation du spin en précession libre en fonction du temps  $\tau$ . Cette courbe fournit directement une mesure du paramètre  $T_1$  par des moyens purement optiques.

Avant de procéder aux mesures des temps de décohérence  $T_2$  et  $T_2^*$ , il est nécessaire de déterminer un paramètre crucial : la période d'oscillation de Rabi. Ces oscillations portent le nom d'Isidor Isaac Rabi, en son honneur, et représentent des variations cohérentes dans la population des deux états énergétiques du centre NV. Ces variations sont induites par une impulsion micro-ondes dont la durée est soigneusement contrôlée, émise à une fréquence proche de celle de la résonance du système. L'application de cette impulsion entraîne une précession du spin électronique du centre NV. En modulant la durée de l'impulsion tout en observant l'état du système, il est possible de visualiser les oscillations de Rabi. Ces oscillations se manifestent par des variations de la fluorescence du centre NV, en fonction de la durée de l'impulsion micro-ondes, à une fréquence et une amplitude spécifiques, comme illustré figure 6 (b). L'analyse de ces oscillations permet ainsi de déterminer la période caractéristique de l'oscillation Rabi pour une fréquence et une amplitude micro-ondes définies.

Pour mesurer  $T_2$  et  $T_2^*$ , les protocoles mis en œuvre sont plus complexes. La mesure de  $T_2^*$  s'appuie sur un protocole de précession libre, que nous nommerons protocole Ramsey. Ce protocole débute par l'initialisation du centre NV avec une impulsion laser, suivie d'une impulsion micro-ondes d'une durée correspondant à un quart d'une oscillation de Rabi ( $\frac{\pi}{2}$ ). Cette impulsion place le spin dans une superposition cohérente d'états, représentée par :  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|ms = 0\rangle + |ms = +1\rangle)$ . Ensuite, un intervalle de temps  $\tau$ , variable, est observé pour permettre la précession libre du spin. Après cela, une seconde impulsion micro-ondes  $\frac{\pi}{2}$  est appliquée pour projeter les informations de phase accumulées sur la population relative des états de spin  $|ms = 0\rangle$  et  $|ms = +1\rangle$ . Une impulsion laser finale est utilisée pour lire l'état du spin.

Ce protocole permet d'observer les franges de Ramsey, c'est-à-dire des variations de fluorescence en fonction de la durée de  $\tau$ , qui s'amortissent en raison de la décohérence, avec un temps caractéristique  $T_2^*$  [17], comme illustré figure 6 (c).

Le temps de cohérence  $T_2$  peut être déterminé à l'aide de protocoles d'échos de spin, tels que les échos de Hahn ou les séquences de Carr-Purcell-Meiboom-Gill (CPMG). Pour le protocole d'écho de Hahn, la séquence commence par une impulsion de polarisation laser, suivie de trois impulsions micro-ondes. La première impulsion micro-ondes a une durée de  $\frac{\pi}{2}$ , la seconde une durée de  $\pi$ , et la troisième à nouveau une durée de  $\frac{\pi}{2}$ . Ces impulsions micro-ondes sont espacées par des intervalles de temps  $\tau$ , dont la durée est variable. La figure 6 (d) permet d'illustrer un tel comportement.

	(a) T1	(b) Rabi	(c) Ramsey	(d) Hahn echo
Laser				
Micro-ondes				
Lecture				
Paramètre	Temps d'attente entre les impulsions laser	Durée de l'impulsion microondes	Durée de précession libre	Durée interimpulsions d'évolution du spin
Courbes de relaxations				

**Figure 6:** Exemple des protocoles de mesures des temps de relaxation caractéristiques des centres NV. Sont représentés ici les protocoles d'impulsions laser, micro-ondes et de lecture pour la mesure de  $T_1$ , de la fréquence Rabi, de  $T_2$  et  $T_2^*$ . (a) Le protocole de  $T_1$  de mesure de la relaxation longitudinal du centre NV est purement optique et permet d'obtenir la courbe de décroissance de la fluorescence en fonction de l'intervalle de temps  $\tau$  après l'initialisation dans l'état  $|ms = 0\rangle$ . La courbe rouge représente la réponse d'un centre NV présentant un grand  $T_1$ , typiquement dans un diamant massif, la courbe bleu en pointillés représente la réponse d'un centre NV présentant un  $T_1$  plus faible comme dans les nano-diamants et les pointes AFM-NV. (b) Le protocole de mesure Rabi consiste à faire varier la durée  $\tau$  de l'impulsion micro-ondes afin de déterminer la fréquence de Rabi du NV à une fréquence et une puissance micro-ondes données. On observe alors le niveau  $|ms = 0\rangle$  aux maxima de fluorescence. On peut alors extraire les temps caractéristiques  $\pi$  et  $\frac{\pi}{2}$  nécessaires dans les protocoles suivants. (c) Le protocole de Ramsey permet d'extraire le temps  $T_2^*$  via l'observation de la fluorescence en fonction de la durée de précession libre  $\tau$  entre deux impulsions micro-ondes de durée  $\pi$ . (d) Enfin, les protocoles d'échos de spins de type Hahn permettent de mesurer le temps  $T_2$ . L'utilisation de protocoles de type CPMG permettent de mieux découpler le spin de l'environnement et ainsi augmenter  $T_2$ , courbe rouge, par rapport à un protocole de Hahn, courbe bleu en pointillés.

Cette séquence d'impulsions crée un écho de spin qui permet de mesurer le temps de

cohérence  $T_2$  du centre NV. L'écho de spin est une technique puissante pour réduire les effets de déphasage dus à l'environnement inhomogène, permettant ainsi une mesure plus précise de  $T_2$  [21–23]

Les protocoles CPMG, qui impliquent la répétition de l'impulsion  $\pi$  entre les impulsions  $\frac{\pi}{2}$ , créent un découplage dynamique de l'état du spin par rapport aux interférences environnementales. Ils permettent d'obtenir des mesures de  $T_2$  plus longues en affinant la réponse du filtre équivalent créé par les impulsions  $\pi$  et en réduisant la sensibilité au bruit magnétique hors de la bande passante.

De nombreux autres protocoles de découplage dynamique, issus de la RMN, permettent d'améliorer la capacité de détection des centres NV. Ces techniques permettent un contrôle plus efficace et robuste de l'état de spin électronique du NV, ouvrant la voie à des applications plus précises et fiables [24]. Les protocoles les plus courants sont illustrés figure 6.

Dans le cadre de cette thèse, l'application pratique de ces protocoles, ainsi que d'autres techniques pertinentes, sera abordée en détail dans la section 2.2.6.

## 1.3 Magnétométrie de champs statique

Comme établi dans la section précédente, l'analyse des propriétés optiques des centres NV nous offre la possibilité de sonder l'état de leur spin. Dans cette section, nous allons explorer les principes fondamentaux qui permettent d'exploiter ces propriétés pour transformer les centres NV en capteurs de champs magnétiques, en nous concentrant spécifiquement sur la mesure de champs statiques ou quasi-statiques [25].

Il est essentiel de souligner que la majorité de ces techniques de mesure s'appuie sur l'étude de l'effet Zeeman du champ magnétique externe sur la résonance paramagnétique électronique (RPE) des centres NV, détectée optiquement par ODMR (Optical Detection of Magnetic Resonance). Cependant, nous verrons également que, dans certaines conditions, notamment à des valeurs élevées de champ magnétique ou dans certaines orientations par rapport aux centres NV, il devient nécessaire d'utiliser directement la fluorescence des centres NV comme moyen de contraste pour les mesures, indépendamment de toute résonance [4, 26].

### 1.3.1 Magnétométrie de champs "faibles"

Pour comprendre la physique du spin du centre NV couplé à un champ magnétique externe, nous allons étudier la modification de son énergie par celui-ci. Son hamiltonien à champ nul s'écrit :

$$\mathcal{H}_0 = hDS_z^2 + hE(S_x^2 - S_y^2) \quad (1.1)$$

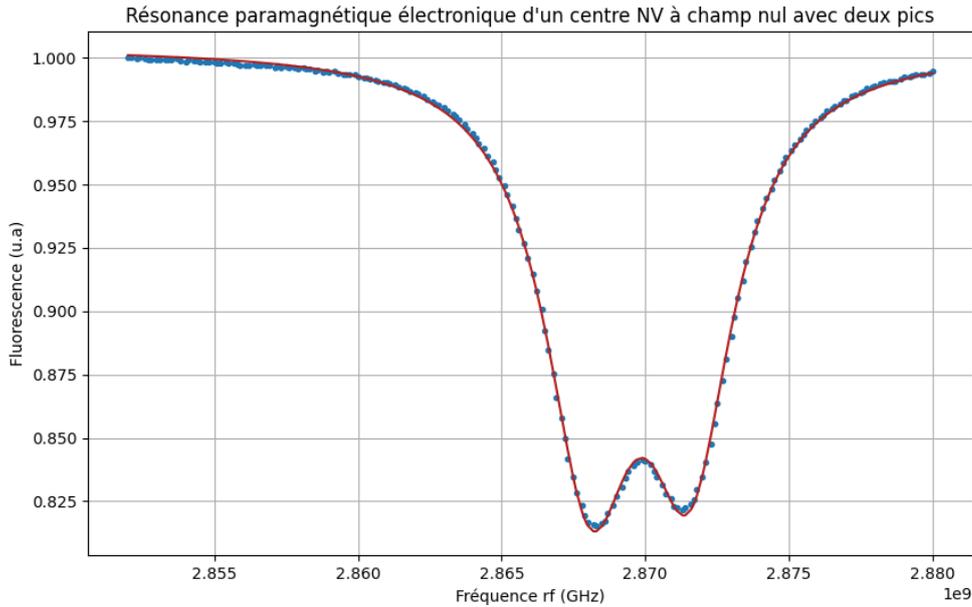
dans laquelle,  $S_x$ ,  $S_y$  et  $S_z$  sont les opérateurs de spin  $S = 1$ , avec  $z$  collinéaire avec l'axe de quantification du NV,  $h$  est la constante de Planck et  $D$  est le paramètre de clivage axiale du centre NV,  $E$  est le paramètre de clivage transverse [27].

Dans l'équation 1.1, le premier terme est gouverné par la constante de clivage axial  $D$  et est relié aux recouvrements des fonctions d'ondes des électrons et est de ce fait sensible aux déformations axiales de maille cristalline, ainsi qu'aux variations de température. on considère que  $D \approx 2.87$  GHz [13, 28].

Le second terme, est lui caractérisé par le paramètre  $E$  qui est le résultat d'une déformation locale du réseau cristallin qui abaisse la symétrie du défaut. Cette déformation provient typiquement d'un stress mécanique ou d'un champ électrique [29, 30].

Dans les faits, une valeur importante de  $E$  est caractéristique des NV implantés dans des nanodiamants et des contraintes mécaniques de surface se répercutant sur ceux-ci.

Dans le cadre de notre étude nous utilisons des pointes de diamants où les centres NV sont très proches de la surface, occasionnant des valeurs de constante de clivage transverses de l'ordre de  $10\text{MHz}$ , comme l'illustre la figure 7. Il est à noter que dans certains cas, dans les diamants massifs, cette constante peut atteindre des valeurs aussi basses que  $100\text{kHz}$ .



**Figure 7:** Mesure typique de spectre de résonance RPE d'un centre NV unique dans un nanodiamant sans champ magnétique extérieur appliqué. Les mesures sont en bleu et l'ajustement de données en rouge. Le clivage transverse  $E$  est alors d'environ  $3.5\text{MHz}$  avec un contraste de 18%.

À champ externe nul, les fréquences de résonance du centre NV sont déterminées simplement par :

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

Toutefois, lorsque le champ magnétique externe ne peut plus être considéré comme négligeable, il doit être pris en compte dans la détermination du comportement du centre NV. L'Hamiltonien Zeeman est alors exprimé par :

$$\mathcal{H}_Z = g_{\text{NV}}\mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}, \quad (1.3)$$

où  $g_{\text{NV}}$  représente le facteur de Landé du centre NV,  $\mu_B$  le magnéton de Bohr, et  $\mathbf{S}$  le vecteur des opérateurs de spin.

Exprimé avec les matrices de Pauli :

$$S_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad S_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 \\ i & 0 & -i \\ 0 & i & 0 \end{pmatrix}, \quad S_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (1.4)$$

Dans la base des états propres de  $S_z$ , soit  $\{|ms = +1\rangle, |ms = 0\rangle, |ms = -1\rangle\}$ , le champ magnétique  $\mathbf{B}$  est défini par son amplitude  $B$  et ses angles  $(\theta, \phi)$ , qui déterminent sa direction par rapport à un repère cartésien  $xyz$ . Ceci permettant alors de définir l'Hamiltonien total :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z, \quad (1.5)$$

En prenant comme base  $\mathcal{H}$  comme l'hamiltonien complet du centre NV,  $\mathcal{H}_0$  son hamiltonien à champ nul et  $\mathcal{H}_Z$  représentant l'interaction Zeeman avec un champ magnétique externe.

$$\mathcal{H} = h \begin{pmatrix} D + \tilde{B} \cos \theta & \tilde{B} \sin \theta e^{-i\phi} / \sqrt{2} & E \\ \tilde{B} \sin \theta e^{i\phi} / \sqrt{2} & 0 & \tilde{B} \sin \theta e^{-i\phi} / \sqrt{2} \\ E & \tilde{B} \sin \theta e^{i\phi} / \sqrt{2} & D - \tilde{B} \cos \theta \end{pmatrix}, \quad (1.6)$$

dans laquelle on définit  $\tilde{B} = \frac{g_{NV}\mu_B}{h} B$  avec  $B = \|\mathbf{B}\|$  et  $\frac{g_{NV}\mu_B}{h} = 28.035(5)$  GHz/T, le rapport gyromagnétique de l'électron.

On peut alors, en diagonalisant  $\mathcal{H}$ , obtenir les énergies propres  $\{E_1, E_2, E_3\}$ , ainsi que les vecteurs propres associés  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ . On peut alors définir les fréquences de résonances en conséquence :

$$\begin{aligned} f_+ &= (E_3 - E_1)/h, \\ f_- &= (E_2 - E_1)/h. \end{aligned}$$

On observe alors une dépendance des fréquences de résonances en fonction de l'amplitude du champ magnétique appliqué,  $B$ , et de l'orientation de celui-ci par rapport à l'axe NV.

En pratique, la composante transverse du champ magnétique va affecter les vecteurs propres en les mélangeant, modifiant ainsi les propriétés optiques de pompage et de lecture du centre NV, jusqu'à rendre cette dernière impossible. Nous verrons dans la suite que ce phénomène peut alors amener à segmenter les régimes d'utilisation du centre NV en fonction de l'intensité et de l'orientation du champ magnétique. On définit le domaine des champs faibles comme le régime où l'effet de la composante transverse du champ est négligeable, figure 8 (d). À l'inverse, dans le domaine des champs forts, cette composante transverse influe significativement sur les états propres du centre NV, nécessitant une prise en compte adaptée dans les analyses, figure 8 (c).

Par convention, [4], nous fixons alors  $D = 2.87$  GHz et  $E = 5$  MHz, correspondant à la situation typique d'un centre NV dans un nanodiamant ou dans une pointe, cette dernière valeur pouvant varier en fonction des données spécifiques des pointes utilisées.

Pour décrire les comportements observés en fonction de  $B$  et  $\theta$ , il est utile de formuler l'Hamiltonien comme la somme des contributions parallèles et perpendiculaires du champ magnétique :

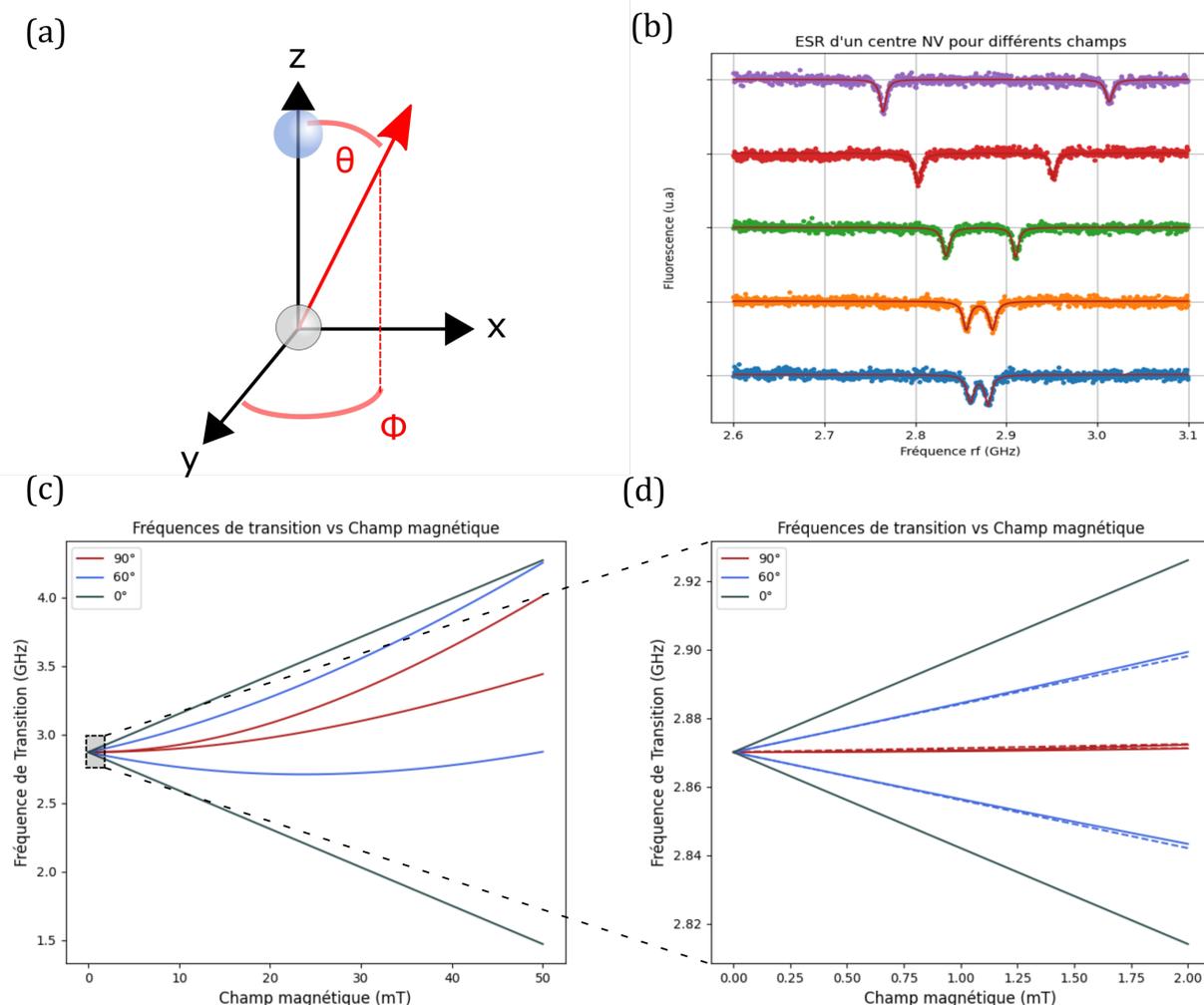
$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\parallel} + \mathcal{H}_{\perp}, \quad (1.7)$$

Avec la composante parallèle :

$$\mathcal{H}_{\parallel} = hDS_z^2 + hE(S_x^2 - S_y^2) + g_{NV}\mu_B B_z S_z, \quad (1.8)$$

Et la composante orthogonale :

$$\mathcal{H}_{\perp} = g_{NV}\mu_B (B_x S_x + B_y S_y). \quad (1.9)$$



**Figure 8:** Analyse de l'interaction entre le champ magnétique et un centre NV. (a) Orientation des angles ( $\theta, \phi$ ) du champ magnétique par rapport à l'axe NV : Cette partie illustre les angles ( $\theta, \phi$ ) formés entre le champ magnétique externe et l'axe du centre NV, ainsi que son référentiel intrinsèque. (b) Spectres RPE d'un centre NV sous différents champs magnétiques : Différents spectres de résonance électronique de spin d'un même centre NV sont présentés sous l'influence de divers champs magnétiques externes. On observe que les fréquences des transitions  $|ms = 0\rangle \rightarrow |ms = -1\rangle$  et  $|ms = 0\rangle \rightarrow |ms = +1\rangle$  s'écartent l'une de l'autre à mesure que l'intensité du champ magnétique augmente. (c) Comportement d'un centre NV avec augmentation du champ appliqué : Cette visualisation montre le comportement typique d'un centre NV en réponse à l'augmentation du champ magnétique appliqué. Les fréquences  $f_+$  et  $f_-$  varient en fonction de l'intensité du champ et de son orientation par rapport à l'axe NV. Un alignement non parfait du champ avec l'axe NV entraîne une réponse non linéaire du spectre qui augmente avec  $\theta$  et  $\phi$ . (d) Réponse à faible champ : À faible champ, la réponse du centre NV peut être approximativement considérée comme linéaire. Les lignes en pointillés représentent cette approximation linéaire, soulignant la simplicité de la réponse du centre NV dans ces conditions.

Dans ce contexte, la condition de champ faible est définie comme celle où la composante transverse du champ est très inférieure à sa composante axiale, c'est-à-dire  $\mathcal{H}_\perp \ll \mathcal{H}_\parallel$ .

L'axe N-V de quantification du spin étant aligné avec l'axe Z, les composantes axiale

et transverse du champ magnétique sont définies de la manière suivante :

$$B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| = |B_z|, \quad (1.10)$$

$$B_{\perp} = \|\mathbf{B} \times \mathbf{u}_{\text{NV}}\| = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}, \quad (1.11)$$

impliquant alors la condition  $\mathcal{H}_{\perp} \ll \mathcal{H}_{\parallel}$  sous la forme :

$$B_{\perp} \ll \left| \frac{hD}{g_{\text{NV}}\mu_B} - B_{\text{NV}} \right|. \quad (1.12)$$

Sous la condition d'un champ transverse très faible, il est possible de négliger cette composante et d'approximer que le champ  $B$  est aligné avec l'axe NV, désigné par  $B_{\text{NV}}$ . Dans cette approximation, les angles  $\theta$  et  $\phi$  sont considérés comme nuls, et les fréquences de résonance dépendent uniquement de l'amplitude du champ appliqué, selon l'équation :

$$f_{\pm}(B_{\text{NV}}) \approx D \pm \sqrt{E^2 + \left( \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} B_{\text{NV}} \right)^2}. \quad (1.13)$$

Dans l'état de l'art, on considère que cette approximation est acceptable pour des champs transverses typiquement inférieurs à  $B \lesssim 5$  mT. Sous cette condition, une réponse linéaire des fréquences de résonance peut être admise. Réaliser une mesure de magnétométrie en variant un champ magnétique externe impose ainsi d'aligner son orientation sur celle du centre NV. À cet égard, la récente disponibilité de pointes AFM-NV  $\langle 111 \rangle$  avec l'axe NV aligné orthogonalement à la surface représente une avancée significative.

Si la condition de faible champ transverse est respectée, il est alors possible d'estimer le champ magnétique en mesurant l'une des fréquences de résonance et de remonter au champ selon l'équation suivante :

$$B_{\text{NV}} \approx \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \sqrt{(f_{\pm} - D)^2 - E^2}. \quad (1.14)$$

Cette formule permet de calculer l'amplitude du champ magnétique  $B_{\text{NV}}$  de manière absolue à partir des fréquences de résonance observées  $f_{\pm}$ , et des constantes fondamentales  $D$ ,  $E$ ,  $g_{\text{NV}}$ ,  $\mu_B$  et  $h$ . En pratique, diverses techniques instrumentales et protocoles sont disponibles pour mesurer ces fréquences de résonance. Le principal défi réside dans la capacité à effectuer ces mesures dans les plus brefs délais, en particulier pour la cartographie de champs magnétiques où un grand nombre de points de mesure sont nécessaires pour obtenir une image détaillée. La rapidité de ces mesures est essentielle pour améliorer l'efficacité et la précision des cartographies magnétiques, surtout lorsque l'on cherche à capturer des variations fines ou dynamiques du champ magnétique, ces protocoles seront abordés dans la section 2.4.

### 1.3.2 Magnétométrie de champs "forts"

Il est important de noter qu'il n'est pas toujours possible de réaliser des mesures de magnétométrie NV en conservant la contrainte d'un champ transverse très faible,  $B_{\perp} \gtrsim 5$  mT. Dans le cadre du formalisme sémantique développé dans les travaux de J.P. Tetienne, on entre alors dans un régime dit de "champs forts". Dans ces conditions l'approximation de l'équation 1.12 n'est plus valable, on doit tenir compte de l'amplitude et de l'orientation du champ  $B$  car celui-ci va alors avoir tendance à imposer l'axe de quantification du système. L'approximation de réponse linéaire symétrique n'est plus applicable et il faut

tenir compte de l'Hamiltonien complet pour pouvoir décrire la réponse du centre NV. La non colinéarité de la direction du champ et de l'axe NV vont alors mélanger les états de spin. On se retrouve alors dans un régime où il est nécessaire de réaliser des mesures des deux fréquences de résonances afin de pouvoir remonter à l'amplitude de  $B$  mais aussi à son orientation par rapport à l'axe NV. Il restera alors une indétermination sur la direction du champs mesuré. Ce dernier point peut être résolu soit en polarisant circulairement la micro-onde soit en utilisant un champs de bias de direction connue.

Afin d'avoir accès à ces informations il est nécessaire de poser l'équation des énergies propres, solutions du polynôme caractéristique de l'équation 1.6:

$$x^3 - \left( \frac{D^2}{3} + E^2 + \tilde{B}^2 \right) x - \frac{\tilde{B}^2}{2} \Delta - \frac{D}{6} (4E^2 + \tilde{B}^2) + \frac{2D^3}{27} = 0, \quad (1.15)$$

ici, on définit  $\Delta = D \cos 2\theta + 2E \cos 2\phi \sin^2 \theta$  tout en négligeant le paramètre  $E$  et  $\phi$  [4]. Ainsi on peut définir  $\tilde{B}$  et  $\theta$  en fonction de  $f_+$  et  $f_-$  via les expressions de  $\tilde{B}^2$  et  $\Delta$ , [31] :

$$\tilde{B}^2 = \frac{1}{3} (f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- - D^2 - 3E^2) \quad (1.16)$$

$$\Delta = \frac{7D^3 + 2(f_+ + f_-) (2(f_+^2 + f_-^2) - 5f_+ f_- - 9E^2) - 3D (f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- + 9E^2)}{9 (f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- - D^2 - 3E^2)}. \quad (1.17)$$

Une application concrète de cette méthode est illustré dans le chapitre 2, figure 26 et figure 27 , pour des mesures réalisées avec l'application d'un champ magnétique externe via un aimant permanent afin de déterminer l'orientation du centre NV par rapport à ' $B$ ',  $\theta \approx 57^\circ$ , et de vérifier l'orientation de la pointe AFM-NV.

### 1.3.3 Magnétométrie par extinction de fluorescence

Dans le contexte de champs transverses intenses, typiquement lorsque le champ n'est pas aligné avec l'axe NV et dépasse  $B \gtrsim 20$  mT, le contraste des raies de résonance paramagnétique électronique tend à diminuer et finalement disparaître avec l'augmentation du champ. Cette situation rend la mesure du champ via la résonance RPE du NV impraticable.

Cependant, les travaux de Tetienne et al. [26] ont démontré la possibilité d'exploiter les limitations des propriétés optiques des centres NV sous de forts champs transverses pour développer une nouvelle méthode d'imagerie, basée sur l'extinction de fluorescence. Ces recherches ont montré que de forts champs transverses réduisent le contraste optique des raies RPE, diminuent le temps de vie moyen du niveau excité et réduisent l'intensité moyenne de fluorescence. Cette dernière caractéristique peut être exploitée comme un agent de contraste pour la cartographie magnétique. L'analyse de l'impact d'un champ transverse sur la photodynamique du centre NV a révélé que cette composante mélange les états de spin des niveaux fondamental et excité. La présence d'un champ  $B$  transverse diminue la fluorescence émise en raison d'une augmentation du taux de relaxation non radiative, tout en maintenant constant le taux de relaxation radiative.

Les propriétés magnéto-optiques du centre NV deviennent alors particulièrement utiles pour la magnétométrie, car elles permettent de détecter des variations significatives du champ magnétique transverse sans nécessiter une excitation RF. Cette méthode qualitative est complémentaire à la magnétométrie par spectroscopie RPE, efficace jusqu'à des

---

champs d'environ 20 mT, mais est difficilement quantitative.

## 1.4 Conclusion

Les propriétés optiques et électroniques fondamentales des centres NV ont été abordées dans ce chapitre, posant les bases pour leur utilisation dans des techniques de mesure de champs magnétiques. Ces structures, ayant fait l'objet d'études approfondies au cours des deux dernières décennies, ont trouvé des applications variées, notamment en magnétométrie, domaine qui a connu un essor considérable ces dix dernières années. Ce chapitre a introduit les caractéristiques clés des centres NV, telles que leur structure électronique et leurs propriétés photophysiques, ainsi que les principaux protocoles pour les étudier. Les chapitres suivants se concentreront sur les travaux réalisés durant cette thèse, exploitant les propriétés des centres NV dans des développements d'instrumentaux, en particulier deux microscopes à centre NV. Nous y explorerons l'application pratique de nombreuses notions et protocoles présentés dans ce premier chapitre dans des conditions expérimentales réelles.



# RÉALISATION D'UN MICROSCOPE À CENTRE NV SUR TABLE OPTIQUE

---

## 2.1 Introduction

Dans cette section, nous examinerons la conception d'un système de microscopie en champ proche dédié à la magnétométrie par centre NV. Nous débuterons par une description détaillée de l'architecture du système, couvrant à la fois l'aspect matériel de l'Atomic Force Microscope (AFM), les composants optiques, ainsi que les protocoles de mesure à mettre en place pour effectuer les mesures de magnétométrie. Ensuite, nous examinerons la mise en place des mesures à travers le système développé, notamment la magnétométrie NV par extinction de fluorescence en champ fort.

Les développements discutés dans cette section décrivent un système fonctionnant sur table optique, ce qui dans le contexte de ce travail de thèse se différencie du développement du microscope AFM-NV travaillant sous champ ultra-stable dans l'entrefer d'un électro-aimant. Il est à noter que dans la mesure du possible les éléments et développements de ce système sur table optique utilisent des structures le plus proche possible du microscope sous champs ultrastable afin de pouvoir les tester dans ce système avec moins de contraintes que dans la version sous champ ultrastable.

## 2.2 Architecture du microscope a centre NV

La mise en place d'un système de microscopie en champ proche dédié à la magnétométrie par centre NV implique le développement de plusieurs sous-systèmes qui doivent fonctionner de manière coordonnées pour réaliser ces mesures.

Tout d'abord, l'étude des propriétés des centres NV se fait principalement par des méthodes optiques. En conséquence, le système de mesure repose sur des composants optiques. Pour la mesure d'un centre NV unique, nous utilisons un montage dit "confocal" qui permet de focaliser un faisceau laser d'excitation (532 nm) sur le centre NV et de détecter la fluorescence (600 - 800 nm) émise par le centre NV.

La deuxième partie du système repose sur notre capacité à appliquer une onde radiofréquence dans le domaine des micro-ondes sur le centre NV. Cette micro-onde est nécessaire pour effectuer des protocoles de résonance paramagnétique électronique sur le centre NV. Nous pouvons ensuite détecter ces résonances optiquement (ODMR, Optically Detected Magnetic Resonance).

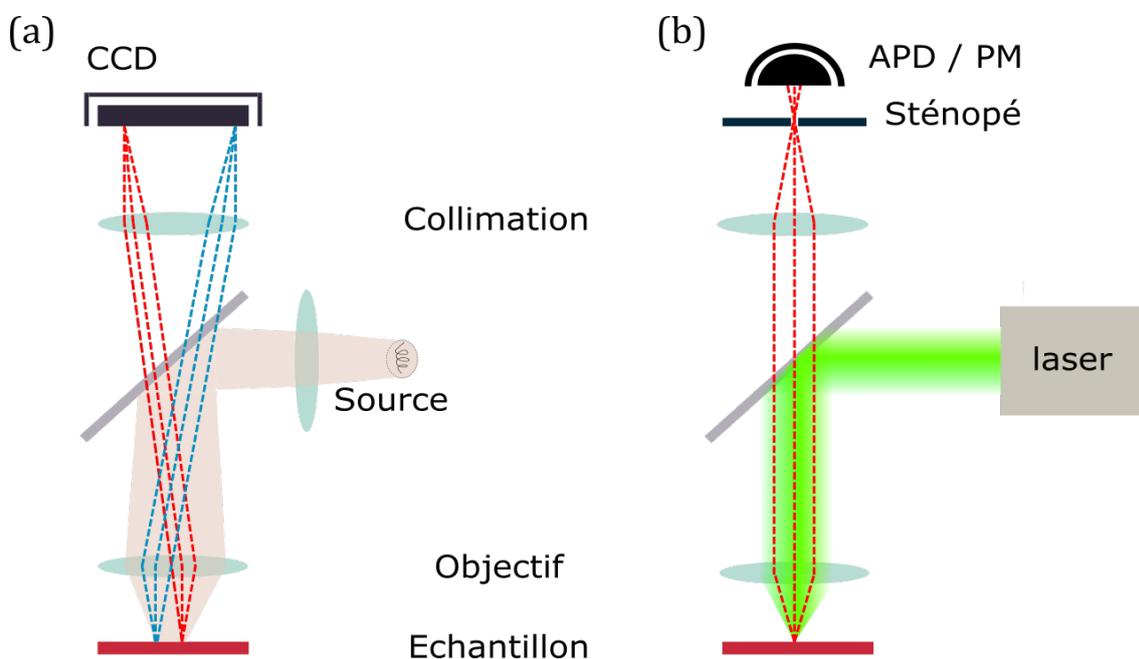
La troisième section explicitera les solutions mises en place afin de permettre d'appliquer un champ magnétique externe contrôlé sur l'ensemble centre NV / échantillon.

La troisième partie du système concerne la mise en place d'un système de microscopie à force atomique (AFM). Dans notre cas, nous avons délibérément choisi de développer notre propre système AFM dès le début du projet afin de prendre en compte les spécificités

du microscope fonctionnant sous champ ultra-stable que nous développons en parallèle. Ce sous-système nous permet de régler l'altitude de la pointe de diamant à une dizaine de nanomètres de la surface et de réaliser des cartographies avec une résolution nanométrique. Dans le contexte de la magnétométrie NV, cela nous permet de positionner le centre NV de manière très précise par rapport à l'échantillon.

Enfin, après une rapide mise en perspective du système complet, nous discuterons de notre capacité à mettre en place et à maîtriser des protocoles de mesure des états de spin. Cette section englobe divers aspects, notamment la génération d'impulsions laser et micro-ondes, ainsi que la programmation des protocoles de contrôle instrumentaux. Nous concluons sur les différents modes d'imageries possibles sur cet instrument.

### 2.2.1 Système optique confocal



**Figure 9:** Schéma de principe d'un système d'imagerie d'imagerie champ large et confocal. (a) montage de type microscopie champ large, une source de lumière polychromatique permet une illumination globale du champ de vision sur l'échantillon. Dès lors un point d'émission sur le plan objet va correspondre à un point sur le champ image via une re-focalisation. Il n'y a pas de sélection spatiale forte du point d'observation. les rayons correspondant aux points d'observation sont en pointillés. (b) schéma de principe d'un système confocal, une source de lumière monochromatique cohérente collimaté à l'infini est focalisé en un point via l'objectif sur le plan image en limite de focalisation de l'objectif. le même point est observé soit par réflexion soit par fluorescence via un filtrage spatial grâce à un sténopé (pinhole) avant une détection très sensible, par exemple une photo-diode avalanche ou un tube photo-multiplificateur. Dans cette configuration c'est le déplacement de l'échantillon, typiquement via un scanner piézo, qui permet de reconstituer une image.

Un système confocal est essentiel pour l'étude des propriétés optiques des centres NV. La microscopie "classique" d'imagerie en champ large, repose sur l'alignement du plan objet d'un système optique (composé de lentilles et/ou de miroirs) avec l'objet à observer, puis de faire correspondre le plan image avec un capteur (tel qu'un œil, un film argentique ou

un capteur numérique). Ce type de système est idéal pour l'observation d'échantillons ne nécessitant pas de grossissements extrêmes, mais il devient très complexe lorsque l'on souhaite observer des objets avec une finesse inférieure au micromètre.

La principale difficulté lors de l'étude de phénomènes de très petite taille et de faible luminosité réside dans le fait que l'imagerie en champ large ne permet pas de sélectionner de manière précise la zone d'observation.

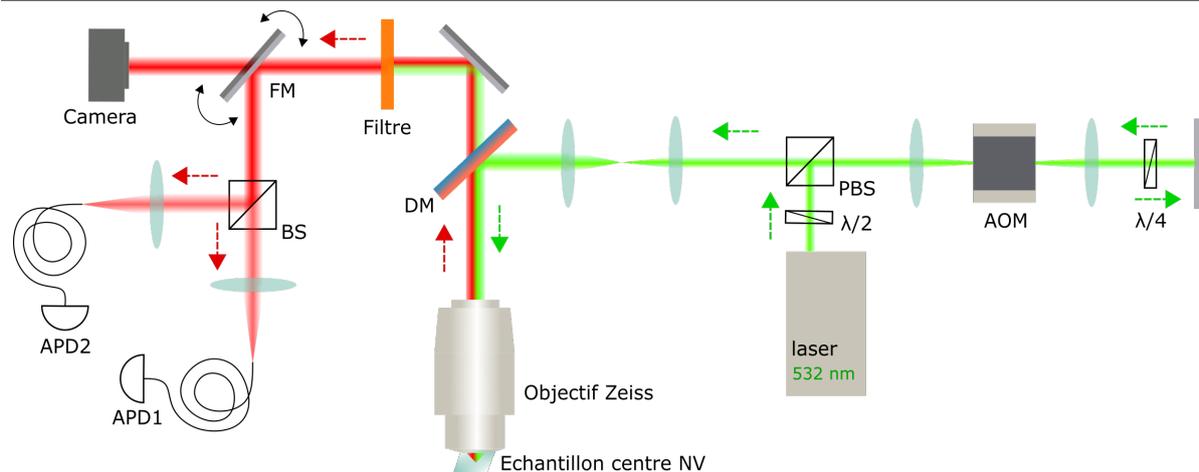
Or, les centres NV sont des défauts ponctuels ayant un taux de fluorescence faible, de l'ordre de  $10^6 - 10^7$  photons émis par seconde. De plus, l'environnement autour d'un centre NV, tels que les impuretés dans le diamant ou les dépôts de surface d'espèces chimiques présents dans l'environnement, ainsi que les signaux parasites provenant de la fluorescence des matériaux composant les antennes micro-ondes, contribuent également au signal lumineux ambiant. Par conséquent, il est essentiel de définir une méthode permettant de filtrer spatialement la zone de fluorescence observée par le capteur optique.

Un système confocal répond parfaitement à ce besoin. Le principe consiste à utiliser un sténopé de taille contrôlée pour faire correspondre la zone d'observation souhaitée avec le grossissement du système optique, comme mis en évidence figure 9. Dans notre cas, nous souhaitons sélectionner une zone d'observation d'environ 500 nm de diamètre. L'objectif de microscope que nous utilisons (Zeiss LD EC Epiplan-NeoFluar 100X/0,75) offre un grossissement de 100 fois et une distance focale équivalente de 2 mm. Pour aligner ces paramètres, nous utilisons un sténopé d'ouverture 50 $\mu$ m et une lentille de collimation ayant une focale donnée par  $f_{\text{collimateur}} = f_{\text{objectif}} \times \frac{50 \mu\text{m}}{500 \text{nm}} = 200 \text{ mm}$ .

Dans le cadre de l'étude de la fluorescence du centre NV, il est essentiel de pouvoir focaliser le laser d'excitation et de collecter la fluorescence émise par la même zone. Dans notre configuration optique, schématisée figure 10, nous utilisons un seul objectif de microscope pour accomplir ces deux tâches. Les faisceaux d'excitation et de fluorescence sont séparés grâce à leurs longueurs d'onde différentes. En effet, le laser (laser quantum torus 532 nm 50 mW) émet à une longueur d'onde de 532 nm, tandis que les longueurs d'onde de la fluorescence se situent dans une plage de 600 nm à 800 nm. Cela nous permet de les séparer en utilisant un filtre passe-bande optique appelé miroir dichroïque (Semrock FF580-FDi01-25x36).

Le faisceau de fluorescence est ensuite soumis à une deuxième filtration (Semrock FF01-665/150-25) avant d'être dirigé vers une lame séparatrice (beamsplitter, Thorlabs BS016) qui le sépare en deux faisceaux d'intensité équivalente. Ces deux faisceaux sont ensuite collimatés dans deux fibres optiques multimodes jouant le rôle de pinhole et connectées à deux photodiodes avalanche (Excelitas SPCM-AQRH-14-FC). Cette configuration à double photodiode dite 'Hanbury Brown and Twiss' est essentielle pour certains protocoles de mesure d'autocorrélation, comme expliqué dans la section 2.2.6 du manuscrit. Ce dispositif permet de mesurer la fluorescence émise par une zone extrêmement restreinte autour du point focal de l'objectif lorsque celle-ci est illuminée par le laser.

Certains protocoles exigent la génération d'impulsions laser très courtes. De manière à pouvoir varier la durée des impulsions, nous utilisons des lasers continu que nous moduler de manière externe. Pour obtenir des impulsions laser courtes, nous utilisons un composant optique externe appelé modulateur acousto-optique (AOM, Acoustic Optic Modulator), modèle AA Opto-electronic MT250-A0.5-VIS. Ce composant diffracte la lumière sur une onde acoustique que l'on peut moduler analogiquement. En sélectionnant l'ordre 1, nous pouvons moduler le faisceau d'excitation en contrôlant l'excitation électrique de l'AOM. Cela nous permet d'obtenir des impulsions laser avec un temps de montée de l'ordre de 20 nanosecondes nécessaires à nos protocoles.



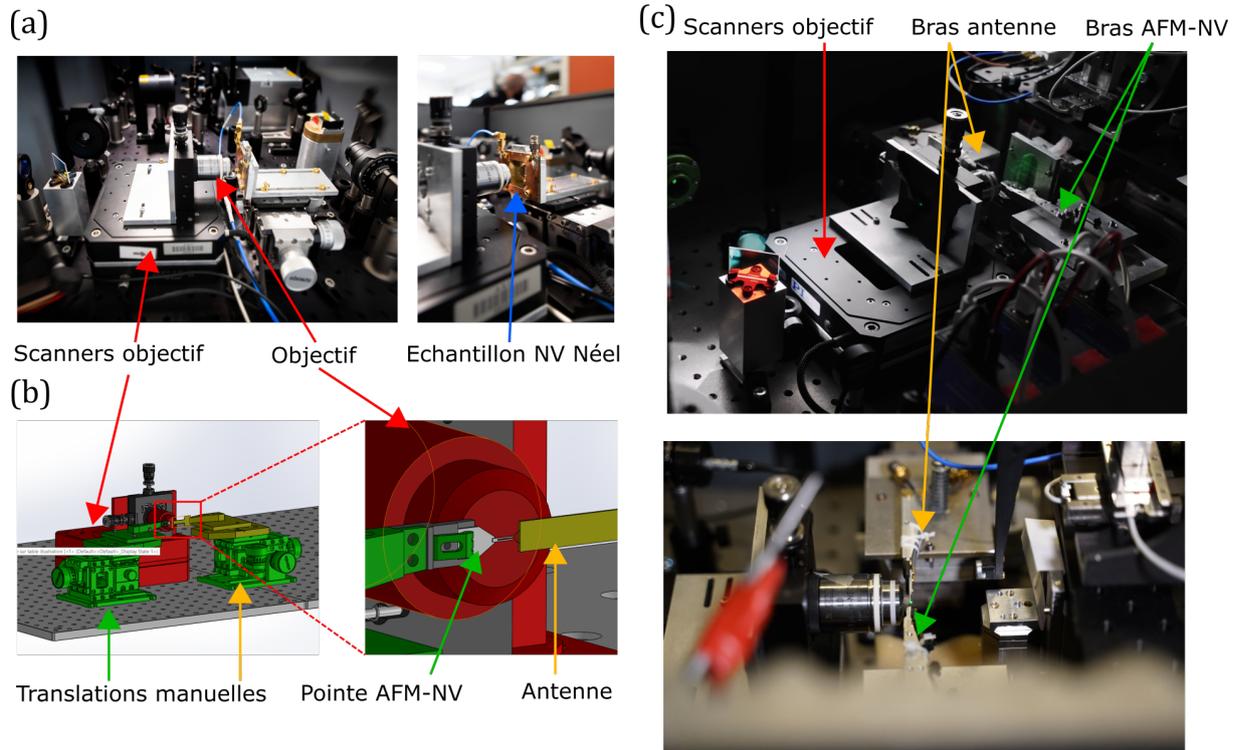
**Figure 10:** Schéma simplifié du montage optique confocal utilisé pour la mesure par fluorescence des centres NV. On retrouve ici les principaux éléments de génération du signal d'excitation laser, avec son modulateur acousto-optique associé sur la droite du schéma. La détection se fait via des photo-diodes avalanches après un filtrage optique via le miroir dichroïque et un filtre passe bande. Le faisceau d'excitation est schématisé en vert et le faisceau de fluorescence en rouge.

Étant donné que notre système confocal est conçu pour observer un seul point dans l'espace à la fois, il est essentiel d'intégrer un ensemble d'actionneurs pour effectuer des cartographies de fluorescence. Dans notre configuration, le centre NV est maintenu fixe, tandis qu'un scanner piézoélectrique à trois axes (Physik Instrumente XY P-517, Z P-518) est utilisé pour déplacer l'objectif de focalisation. Cette approche nous permet de cartographier la fluorescence dans l'espace. La configuration utilisée pour l'étude de différents échantillons de centres NV est illustrée dans la figure 11.

Pour des raisons pratiques, nous avons choisi de conserver l'orientation de l'axe optique parallèle au plan de la table optique. En conséquence, notre pointe AFM-NV, l'antenne et l'échantillon à mesurer sont montés sur un plan orthogonal à la table optique. Cela implique notamment que ces éléments doivent être solidement fixés, voire collés dans le cas de l'échantillon à analyser.

Dans un premier temps il a fallu tester le système confocal avec un échantillon plus simple à manipuler qu'une pointe AFM et une antenne indépendante. Dans le cadre de la cotutelle de cette thèse nous nous sommes appuyés sur les échantillons développés à l'Institut Néel par le Dr Sven Rohr durant sa thèse entre 2011 et 2014 [32]. L'utilisation initiale d'un échantillon déjà connu et maîtrisé par les équipes est cruciale dans le développement d'un instrument de mesure aussi complexe qu'un microscope à centre NV.

Les spécificités de cet échantillon du point de vue radiofréquence seront discutées dans la section 2.2.2. Cependant, pour comprendre les mesures de cartographies de fluorescence, il est essentiel de saisir rapidement la structure de cet échantillon. Il s'agit d'une plaque de quartz sur laquelle est lithographiée une structure conductrice faisant office d'antenne, recouverte de nanodiamants. Ces nanodiamants, des structures monocristallines créées par croissance Haute Pression Haute Température (HPHT), proviennent de solutions de polissage industriel fournies par Microdiamant. La solution utilisée ici contient 20 g/l de nanodiamants, avec un diamètre moyen de 50 nm. L'équipe de S. Rohr a dilué cette solution 50 fois, puis l'a nettoyée par bain à ultrasons pour prévenir la formation d'agrégats de nanodiamants. Les nanodiamants ont ensuite été déposés sur la plaque de quartz par spin-coating (à 4000 tours par minute pendant 30 secondes).

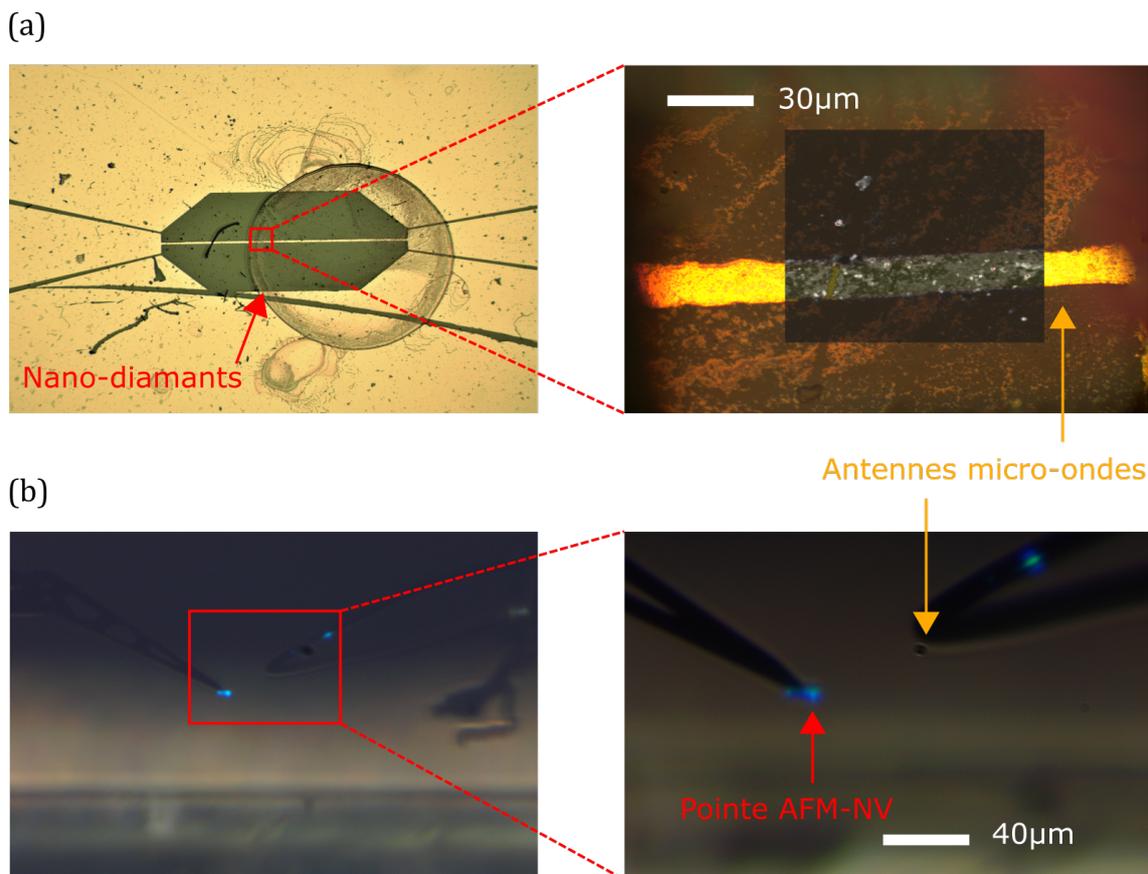


**Figure 11:** (a) Photographie du système de mesure en présence de l'échantillon de centres NV provenant de l'Institut Néel, ce premier montage permet alors de tester les performances du système confocal sur un échantillon aisément manipulable et moins fragile qu'une pointe AFM. On retrouve ici les principaux éléments de système confocal et notamment les actionneurs piézoélectriques de déplacement de l'objectif. (b) vues 3D illustrant les modifications nécessaires pour passer à un montage capable d'accueillir une pointe AFM-NV et une antenne micro-ondes indépendante. Les modifications majeures sont la mise en place de deux translations manuelles de précision pour positionner la pointe NV et l'antenne, elles-mêmes montées sur des bras en aluminium. (c) implémentation finale de cette conception pour pointe AFM-NV et antenne.

Dans une étape ultérieure, nous avons élaboré et installé les équipements nécessaires pour aligner une pointe AFM-NV avec le point focal d'un système confocal, tout en plaçant cette pointe à proximité immédiate d'une antenne micro-ondes, composée d'un fil fin de  $15\ \mu\text{m}$  de diamètre. Les pointes AFM-NV employées, fournies par la société QZabre, intègrent un centre NV unique situé à environ  $10\text{nm}$  de leur extrémité. Ces pointes, réalisées en diamant, adoptent une forme conique ou multiconique, optimisées pour agir comme des guides d'onde optiques. Ce dispositif de pointe est monté sur un résonateur diapason en quartz, via un levier en silicium, ce qui facilite le contrôle de la distance entre la pointe et l'échantillon. Les caractéristiques de ces pointes et leur mise en œuvre pratique seront détaillées dans la section 2.2.4. Des illustrations de ces deux échantillons sont disponibles dans la figure 12.

Ce système nous permet en premier lieu de localiser la position du centre NV. De manière cruciale, il facilite également la mise en place d'un suivi en temps réel de la position de la fluorescence, ce que l'on appelle le suivi du maximum de fluorescence. Cette fonctionnalité est indispensable pour compenser les dérives thermiques au fil du

temps lors de mesures prolongées, comme décrit en détail dans la section 2.2.6.



**Figure 12:** (a) Images en microscopie champ large de l'échantillon fournies par l'institut Néel. On observe sur l'image de gauche la structure d'antenne micro-onde sur laquelle a été déposée une goutte de solution avec des nano-diamants formant un anneau après séchage. L'image de droite superpose une image directe d'un Zoom sur zone 'couleur) avec une superposition d'une image de fluorescence monochrome permettant de mettre en évidence la fluorescence de l'or composant le guide d'onde. (b) Vues de coté, par rapport à l'axe optique du système confocal, vertical dans cette configuration, de l'ensemble pointe AFM-NV et antenne micro-ondes. Une illumination sous lumière blanche à travers le système confocal permet de mettre en évidence la pointe AFM-NV en diamant.

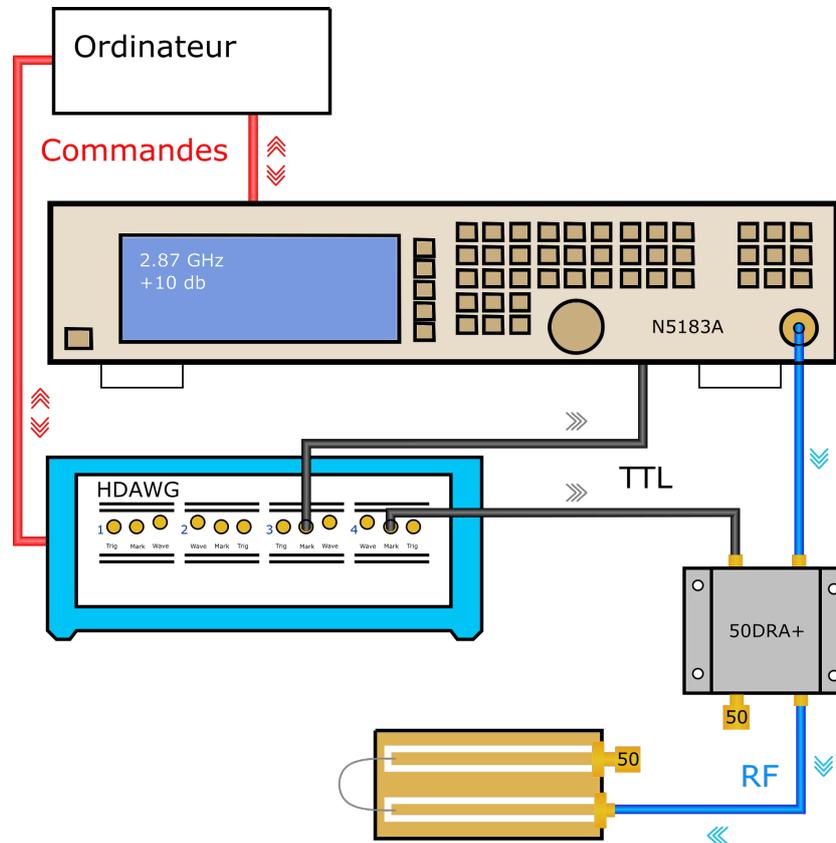
## 2.2.2 circuit micro-onde

Dans le cadre de mesures ODRM (Optically Detected Magnetic Resonance) ou de mesures de dynamique spin, il est essentiel de pouvoir appliquer une onde radiofréquence micro-onde avec une fréquence, une durée et une amplitude précises. Pour générer cette onde, nous utilisons un générateur de micro-ondes de haute précision HP/AGILENT/KEYSIGHT N5183A capable de fournir des micro-ondes jusqu'à 26 GHz.

Le chemin de la micro-onde passe ensuite par un interrupteur micro-onde commandé en tension (minicircuit ZASWA-2-50DRA+ ou PMI P1T-DC40G-65-T-24FM-1NS). Ces interrupteurs peuvent être contrôlés en tension à l'aide de signaux TTL, ce qui nous permet de générer des impulsions micro-ondes jusqu'à quelques nanosecondes.

Pour appliquer la micro-onde sur un échantillon, la méthode classique serait de concevoir un résonateur accordé à la fréquence micro-onde spécifique. Cependant, dans le

contexte de la microscopie NV, la fréquence de la micro-onde peut varier considérablement en fonction de l'amplitude du champ magnétique appliqué sur le centre NV (environ 30 GHz/T). Par conséquent, une antenne accordée ne serait pas adaptée à cette utilisation.



**Figure 13:** Le schéma illustre le circuit micro-ondes, avec les signaux micro-ondes représentés par des chemins en bleu, les contrôles de synchronisation TTL en noir, et le contrôle numérique de commande en rouge. Le générateur de micro-ondes, piloté par l'ordinateur, produit l'onde RF selon des paramètres définis numériquement, et le déclenchement des séquences de fréquences est géré par un séquenceur. Ce dernier, également contrôlé par l'ordinateur, orchestre à la fois le générateur de micro-ondes et le commutateur (switch) micro-ondes. Le signal RF est ensuite acheminé vers un circuit imprimé (pcb) en céramique haute fréquence, équipé de deux guides d'onde coplanaires avec un plan de masse. Sur ce circuit est fixée une boucle de wire-bonding qui forme l'antenne. L'ensemble du circuit est terminé par une charge de  $50\Omega$ , assurant une terminaison adéquate du signal.

La solution appropriée repose sur un système large bande qui s'appuie sur un guide d'onde coplanaire conçu pour être aussi proche que possible du centre NV, et qui se termine par une charge de  $50\Omega$ . Il existe deux approches pour implémenter cette solution. La première consiste en un système simple où le guide d'onde est généralement lithographié directement sur l'échantillon qui doit être analysé par magnétométrie NV. C'est le cas du premier échantillon de test fourni par l'Institut Néel, celui-ci est composé d'une plaque de verre de  $200\mu\text{m}$  d'épaisseur sur laquelle est lithographié un guide d'ondes d'impédance contrôlée  $50\Omega$  servant d'antenne et terminé par une charge  $50\Omega$ . Cette adaptation d'impédance est importante pour limiter au maximum les pertes et réflexions

pour permettre de maximiser la puissance, et surtout le courant passant dans le circuit. Une section de l'échantillon propose une géométrie permettant d'avoir une zone libre sans antenne afin de déposer les nanodiamants et de pouvoir observer leur fluorescence loin de la pollution lumineuse de la fluorescence de l'antenne. Proche de cette zone, la largeur de l'antenne est fortement réduite, jusqu'à  $27\mu\text{m}$  afin d'augmenter localement la densité de courant pour permettre d'augmenter le champ d'induction en résultant. Le conducteur est composé d'une couche d'or de  $150\text{nm}$ , suivi d'une couche de platine pour éviter la diffusion entre la couche d'or et une couche d'accroche sur le verre faite de Titane. La seconde approche est plus universelle et repose sur une boucle fabriquée en fil d'aluminium ou d'or d'environ  $15\mu\text{m}$  de diamètre, fixée à une carte de circuit imprimé (pcb) montée sur un positionneur indépendant. Dans notre cas nous utilisons un système implémentant cette dernière solution fournie par la société QZabre et utilisée dans leurs systèmes QSM - Quantum Scanning Microscope. Ici le principe repose toujours sur un circuit le mieux adapté en impédance que possible où on vient provoquer une constriction locale du conducteur afin de maximiser la densité de courant localement et ainsi maximiser le champ produit. Le circuit est aussi terminé  $50\Omega$  pour maximiser le courant. L'avantage de cette approche est la possibilité d'utiliser la même antenne pour différentes expériences. Une version simplifiée du circuit radiofréquence est illustrée figure 13.

### 2.2.3 application d'un champ de magnétique

L'étude approfondie des propriétés des centres NV, ainsi que la modification des propriétés des structures magnétiques étudiées par magnétométrie NV, nécessitent l'application d'un champ magnétique dont l'intensité et la direction sont contrôlées avec précision sur l'ensemble NV/échantillon. L'objectif principal de ce projet est de parvenir à réaliser de la magnétométrie NV sous des champs ultrastables, un sujet qui sera développé dans le chapitre 4.

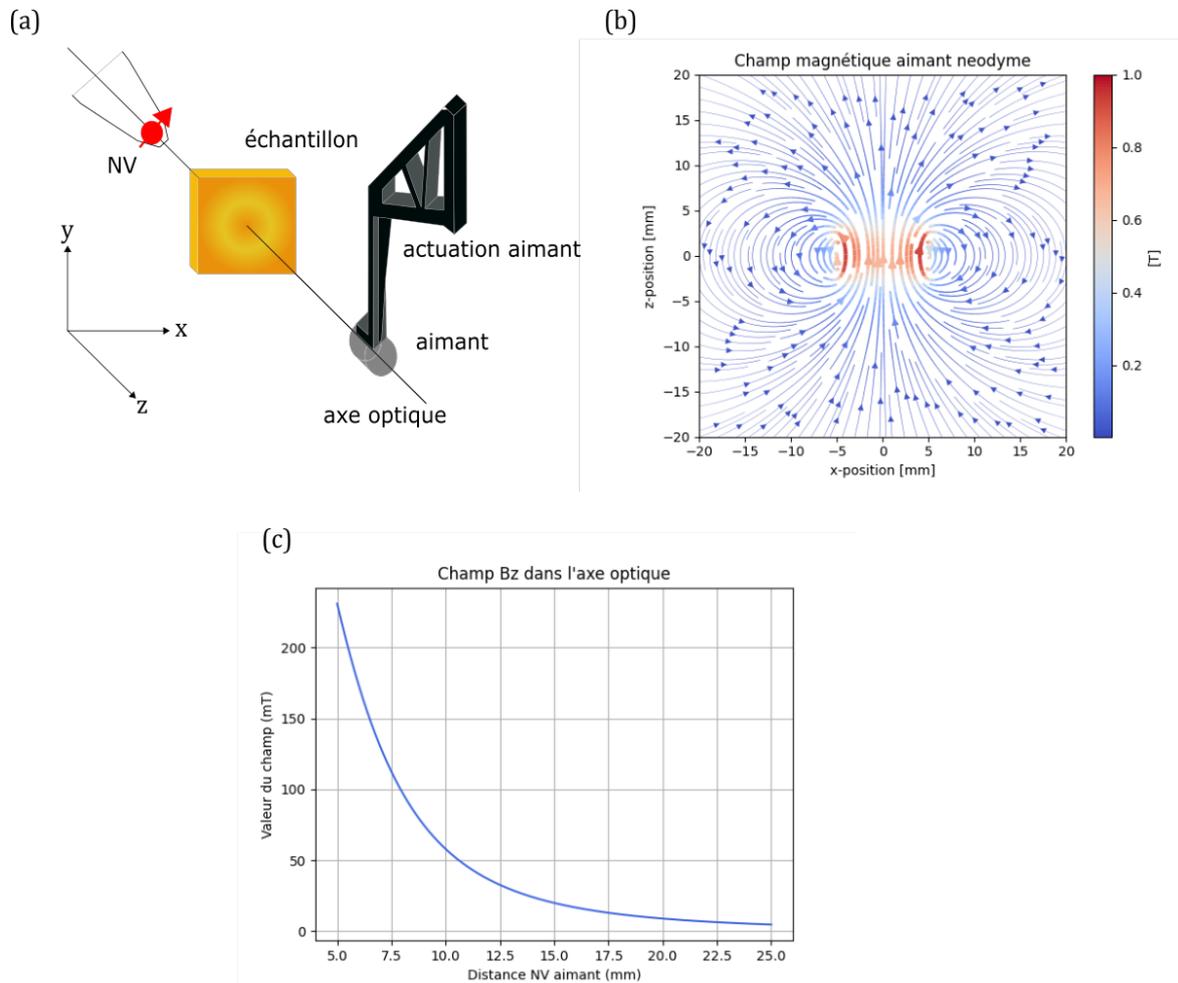
Pour le microscope NV sur table optique, la solution retenue a été l'utilisation d'un aimant permanent comme source de champ, monté sur des moteurs pas-à-pas piézoélectriques (NEWPORT CONEX-SAG-LS32P) pour permettre son déplacement selon les trois axes X, Y et Z. Cette approche, assez courante dans les montages à centre NV, permet d'appliquer des champs relativement intenses (supérieurs à  $100\text{mT}$ ) avec des aimants en néodyme-fer-bore, tout en conservant un encombrement restreint, cf figure 14.

L'implémentation de notre système doit également tenir compte de la nécessité d'insérer un échantillon pour l'analyse par magnétométrie NV, ainsi que les dispositifs associés, entre l'aimant et la pointe AFM-NV. Pour répondre à cette contrainte, nous avons opté pour l'utilisation d'un bras en résine. Ce bras permet de déporter l'aimant des moteurs piézoélectriques, créant ainsi l'espace nécessaire pour positionner l'échantillon et les utilités associées entre l'aimant et la pointe AFM-NV.

Le principal compromis dans notre système concerne la résolution, la précision et, surtout, la stabilité du champ magnétique appliqué dans le temps. En effet, les dilatations thermiques des différents éléments du système peuvent entraîner des variations de la position relative de l'aimant par rapport à l'échantillon et à la pointe AFM-NV. Sans un système de rétroaction, il est difficile de limiter ces déplacements et de garantir la stabilité des paramètres du champ appliqué.

Les moteurs piézoélectriques offrent une fonctionnalité en boucle fermée, assurant une résolution de positionnement de l'ordre de  $25\text{nm}$ . Cependant, les contraintes de conception imposent une distance d'environ  $40\text{cm}$  de matériaux continus entre le centre NV et l'aimant. Ce trajet inclut divers matériaux tels que l'acier inoxydable ( $K^{-1} \approx 14\mu\text{m}/\text{m}/^\circ\text{C}$ ), l'aluminium ( $K^{-1} \approx 23\mu\text{m}/\text{m}/^\circ\text{C}$ ), et la résine ( $K^{-1} \approx 80\mu\text{m}/\text{m}/^\circ\text{C}$ ), avec des variations de température pouvant atteindre  $\Delta T \approx 3^\circ\text{C}$ . En prenant une valeur

moyenne de dilatation thermique de  $K^{-1} \approx 40 \mu\text{m}/\text{m}/^\circ\text{C}$ , on obtient un déplacement potentiel de l'aimant de  $\Delta P = K^{-1} \times \Delta T \times L \approx 0.40 \times 3 \times 40 \approx 50 \mu\text{m}$ . Ainsi, l'aimant peut se déplacer de plusieurs dizaines de micromètres dans les trois directions de l'espace. À ce stade, il est important de réaliser qu'un tel système peut assurer une résolution et une stabilité de champ de l'ordre de quelques %, mais reste loin des performances proches du ppm d'un système comme celui décrit dans le chapitre 4.



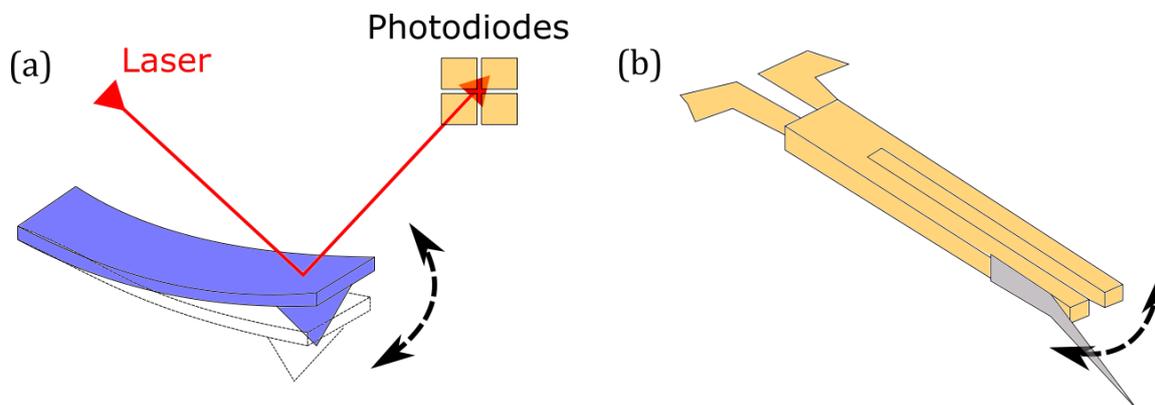
**Figure 14:** (a) schéma de positionnement relatif de l'aimant par rapport à la pointe AFM-NV et à l'échantillon à mesurer. l'axe optique sert alors de référence pour les positionnements. (b) simulation du champ produit par un aimant permanent de 10mm de diamètre pour 5mm de long en néodyme fer-bore, l'axe vertical passant par zéro correspond à l'axe optique. (c) simulation avec le même aimant de la valeur de champ magnétique au niveau du centre NV si l'aimant est aligné avec l'axe optique en fonction de la distance entre l'aimant et la pointe.

La réalisation de résonances RPE sur le centre NV, avec différentes positions de l'aimant, permet de déterminer l'orientation du centre NV, comme détaillé dans la section 2.2.6. Cette approche offre également la possibilité de calibrer le champ magnétique en fonction de la position de l'aimant, facilitant ainsi l'application d'un champ contrôlé sur l'ensemble formé par le centre NV et l'échantillon.

### 2.2.4 implémentation de l'AFM

Pour réaliser des cartographies de champ magnétique par magnétométrie NV, nous utilisons une méthodologie basée sur les techniques de microscopie en champ proche, plus précisément la microscopie à force atomique. En simplifiant, cette technique repose sur la mesure de la force qui agit sur un résonateur mécanique oscillant de l'ordre du micromètre, terminé par une pointe, et un échantillon. Le levier est mis en vibration à une fréquence de résonance, et les gradients de la forces entre la pointe du levier et l'échantillon perturbent cette vibration modifiant cette fréquence. En mesurant soit la fréquence de vibration (FM-AFM), soit l'amplitude de la vibration (AM-AFM), nous pouvons alors déduire les forces en jeu entre le levier et l'échantillon.

Les techniques standard d'AFM (Atomic Force Microscopy) utilisent un levier actionné par un élément piézoélectrique et mesurent son déplacement à l'aide d'un ensemble optique composé d'un laser et de photodiodes qui détectent la réflexion du faisceau sur le levier AFM. Dans le contexte de la magnétométrie NV, la technique de mesure de la réponse mécanique du levier diffère et repose sur l'utilisation d'un résonateur mécanique, un diapason piézoélectrique (TF, Tuning Fork), qui sert à la fois d'actionneur et de capteur de la résonance, cf figure 15.



**Figure 15:** (a) *Système AFM basé sur la réflexion laser : Ce schéma illustre le principe d'un système de microscopie à force atomique utilisant la réflexion d'un laser pour détecter la position de la pointe. Le laser est réfléchi par la pointe de l'AFM et capté par un réseau de photodiodes, permettant ainsi de déduire les variations de position de la pointe en fonction des forces atomiques rencontrées.* (b) *AFM basé sur un résonateur en diapason (tuning fork) : Ce schéma représente un système AFM utilisant un résonateur en diapason, couramment employé dans la microscopie NV. Dans cette configuration, le résonateur en diapason sert à la fois à l'excitation et à la lecture de la position de la pointe. Ce type de système est particulièrement adapté pour la microscopie NV, où la lecture de l'état NV se fait de manière optique et n'est donc pas facilement implémentable sur des techniques AFM laser.*

En pratique, ces types de résonateurs sont utilisés depuis des décennies dans les montres dites "à quartz". Leur utilisation en microscopie AFM est à la fois simple et ingénieuse : un signal sinusoïdal d'excitation à tension contrôlée est appliqué aux bornes du résonateur, ce qui provoque sa déformation. Si la fréquence de ce signal est proche de la fréquence de résonance mécanique du résonateur, l'amplitude de sa déformation, et donc de sa vibration mécanique, augmente considérablement. La résonance du système est mesurée en surveillant le courant traversant le résonateur. Cette mesure est généralement effectuée à l'aide d'un amplificateur transimpédance (voir Annexe A.2), qui

convertit l'information de courant en une tension. Cette tension est ensuite utilisée pour obtenir des informations sur l'état de la résonance mécanique.

Afin d'obtenir un signal avec le moins de bruit de mesure parasite possible, nous utilisons des techniques de mesure synchrone avec un Lock-In Amplifier (Zurich Instruments HF2LI). Ce type de technique de mesure vient perturber la physique du phénomène à étudier à une fréquence spécifique et filtre la réponse des capteurs qui mesurent ce phénomène afin d'éliminer tout le bruit présent à d'autres fréquences du spectre. On parle de démodulation du signal de mesure. Dans notre cas, la fréquence de modulation et de démodulation est située aux environs de la fréquence de résonance des TF, soit environ 32 kHz.

Dans le cadre de nos développements, nous utilisons une pointe AFM en diamant implantée d'un unique centre NV situé à environ 10 nm de profondeur à l'extrémité de la pointe. Cette pointe est fixée à un levier AFM qui, à son tour, est attaché à un diapason en quartz. Cette configuration forme une pointe AFM-NV fournie par la société QZabre.

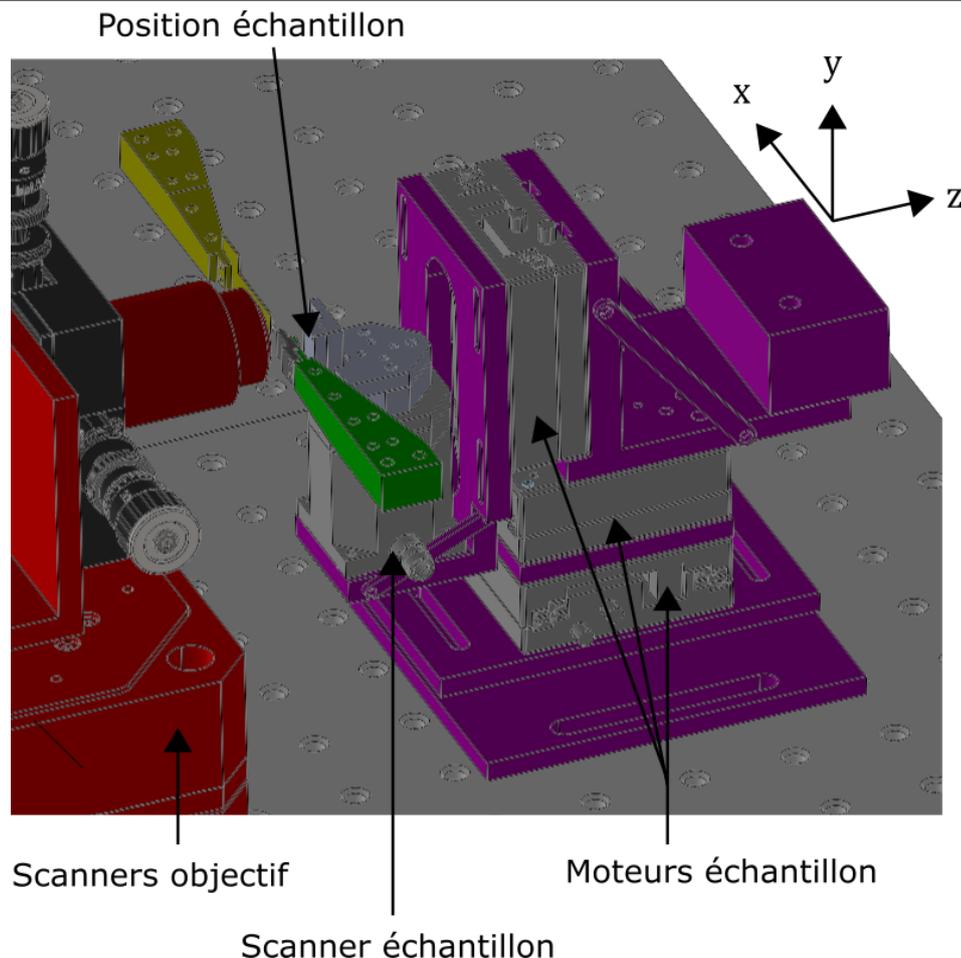
Nous exploitons la mesure de la résonance du diapason pour mettre en place un système de rétroaction afin de réguler la distance entre l'échantillon à analyser et la pointe AFM-NV. Dans notre cas, nous utilisons les fonctionnalités de notre Lock-In, qui nous permet de mettre en place un système de rétroaction en boucle de régulation PID (Proportionnel, Intégral, Dérivé). En pratique, la régulation PID utilise le signal de démodulation du diapason comme variable, avec pour consigne une valeur d'amplitude de ce signal comprise entre 30% et 90% de la valeur de l'amplitude de démodulation à la fréquence de résonance lorsque la pointe est très éloignée de toute surface.

La correction PID génère ensuite un signal qui ajuste la distance entre l'échantillon et la pointe pour la maintenir constante. Sur le plan matériel, cette tension de correction est générée de manière analogique par le Lock-In et ajoutée à une valeur de consigne produite par un DAQ (National Instruments USB 6343) via un circuit sommateur analogique à très bas bruit (voir annexe A.3).

Ce signal global est ensuite utilisé comme consigne pour un contrôleur piézo (Physik Instrumente E-503) qui pilote un scanner piézoélectrique à trois axes de haute précision (Physik Instrumente Pico-cube) pour positionner l'échantillon par rapport à la pointe AFM-NV.

Il s'agit donc ici d'un AFM fonctionnant sur le principe de verrouillage de l'amplitude de modulation, l'AM-AFM. Lorsque, à une fréquence d'excitation donnée, la pointe s'éloigne de la surface, son amplitude de vibration augmente. La régulation va donc rapprocher l'échantillon de la pointe jusqu'à ce que la valeur de démodulation respecte la consigne, et inversement si la pointe se rapproche. La bande passante de la boucle de rétroaction est accordée à la vitesse de balayage requise pour l'imagerie.

Cet ensemble est au cœur de la partie de microscopie en champ proche de notre expérience. Cependant, les déplacements des scanners Pico-cube sont très limités, soit  $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$ , ce qui est insuffisant pour positionner les échantillons. Pour pallier cette limitation, nous utilisons un deuxième étage d'actionnement à base de moteurs pas à pas piézoélectriques (Steinmeyer MT53-PM), figure 16. Ces moteurs piézoélectriques permettent d'effectuer des déplacements discrets d'environ 100 nm avec une course totale importante de 5 mm dans les trois axes de l'espace.



**Figure 16:** Visualisation des trois niveaux d'actuation pour les protocoles AFM-NV. Cette figure illustre les différents niveaux d'actuation impliqués dans les protocoles de microscopie à force atomique couplée à la spectroscopie de centres NV (AFM-NV). Chaque niveau d'actuation joue un rôle spécifique dans le positionnement et le mouvement précis des composants du système. Scanner piézo de l'objectif : Ce dispositif est utilisé pour positionner avec précision le point focal du laser d'excitation sur le centre NV. Actuation piézo pas à pas : Ce système assure le positionnement grossier de l'échantillon à observer via l'AFM. Il permet de déplacer l'échantillon dans l'espace de travail de l'AFM pour localiser la zone d'intérêt. Scanner piézo de précision : Ce scanner est dédié au déplacement précis de l'échantillon pour réaliser les mesures AFM. Il offre une haute résolution et une grande stabilité pour les déplacements fins nécessaires à l'acquisition de données AFM détaillées.

### 2.2.5 système instrumental complet

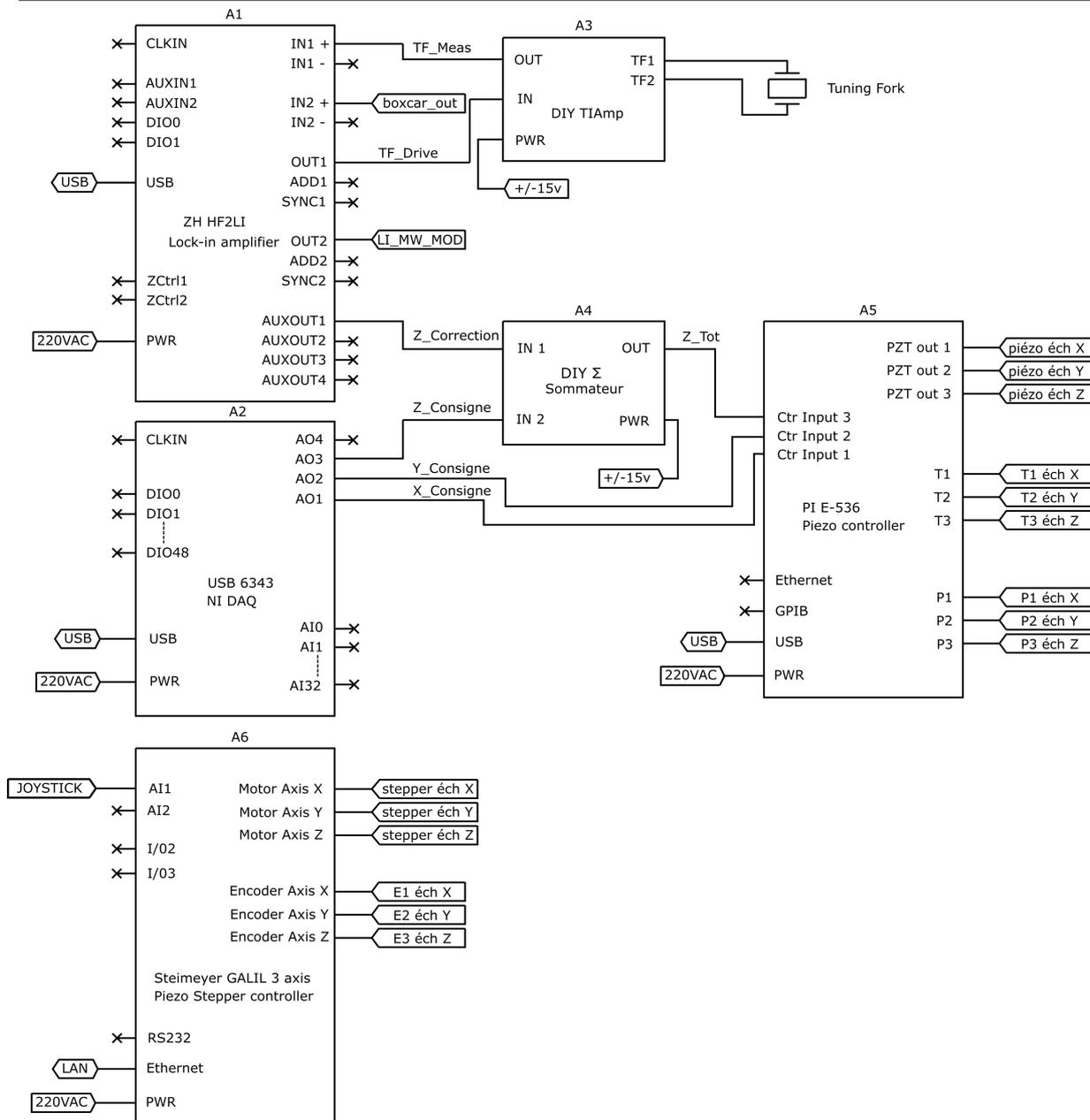
Le système de microscopie basé sur le centre NV intègre et coordonne les divers développements et sous-systèmes précédemment décrits. Cette intégration implique l'organisation méthodique des composants pour former un ensemble fonctionnel et opérationnel. Dans cette configuration de microscope de table optique, la contrainte d'espace, souvent prédominante dans les projets en milieu confiné, est moins restrictive. Une table optique offre un espace de travail relativement vaste et modulable, permettant une disposition aisée des différents sous-ensembles. Ces derniers peuvent être agencés de manière flexible grâce aux pas de vis M6 standardisés. Néanmoins, la précision de positionnement est cruciale au

niveau de la pointe AFM-NV. Il est essentiel de positionner avec une extrême précision la pointe, l'antenne micro-onde, le point focal de l'objectif, et l'échantillon à analyser. Ces composants doivent être ajustés dans un volume restreint, avec des distances relatives variant de quelques micromètres à l'échelle nanométrique. Pour répondre à cette exigence, nous utilisons des positionneurs micrométriques de haute précision (modèles Standa 7TF2, Thorlabs ST1XY-D/M, Newport M-562-XYZ), qui facilitent les réglages initiaux de la pointe AFM-NV, de l'antenne micro-onde, de l'objectif et de l'aimant permanent. L'échantillon est monté sur un système combinant des étages d'actionnement pas-à-pas et des dispositifs de déformation piézoélectriques, éliminant le besoin de positionneurs manuels. Après ces réglages initiaux, les positions relatives de l'objectif, de l'échantillon et de l'aimant sont finement ajustées via des actionneurs piézoélectriques pour effectuer les mesures.

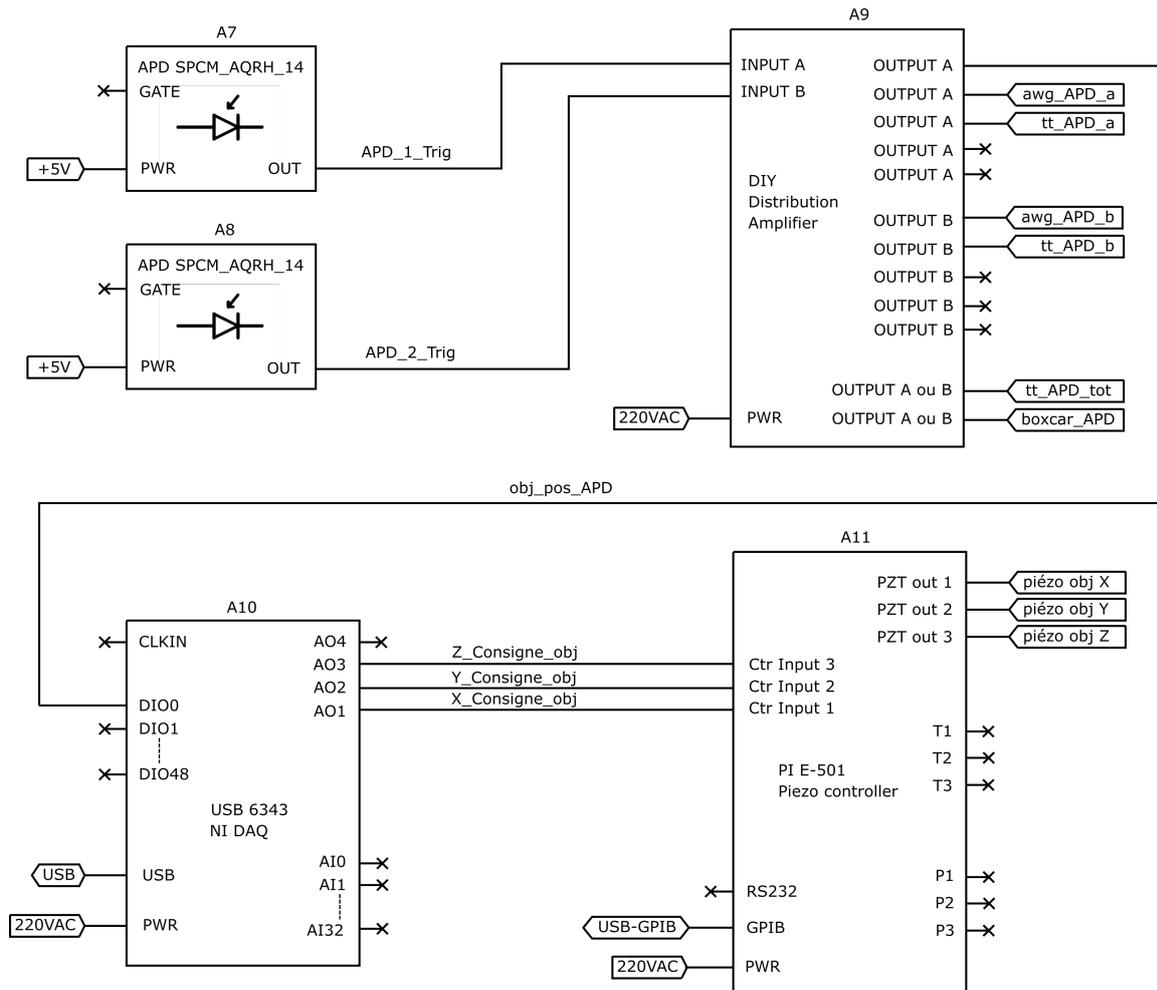
La phase suivante du projet implique la gestion efficace des signaux analogiques et numériques nécessaires aux mesures. Nous catégorisons comme "analogiques" tous les signaux qui ne sont pas des données numériques encodées. Cela inclut les tensions de commande et de mesure, ainsi que les signaux d'état, tels que les déclenchements "trigger" de différents instruments en niveaux TTL (Transistor-Transistor Logic), utilisés pour la synchronisation. Les signaux numériques, quant à eux, se rapportent soit à l'inter des équipements de mesure, soit aux connexions avec l'ordinateur, soit aux processus internes de l'ordinateur. Les équipements utilisés dans notre système ont généralement soit une fonction de commande, soit une fonction de mesure analogique. Étant donné que les mesures sont orchestrées par un ordinateur, une interface entre ces deux "mondes" est nécessaire. Pour cela, nous utilisons principalement trois types de systèmes : un DAQ NI USB6343 pour l'interface avec des tensions de commande continue, un séquenceur HDAWG de Zurich Instruments pour générer des commandes de triggers précises dans le temps, et un TDC (time to digital converter) Timetagger Ultra de Swabian Instruments pour des mesures temporelles précises d'impulsions issues.

Il est crucial de souligner que les mesures effectuées via le centre NV nécessitent un contrôle temporel rigoureux, c'est-à-dire une synchronisation précise. Toutefois, un ordinateur n'est pas adapté à la gestion d'événements rapides et/ou synchronisés avec précision dans le temps, en raison des limitations des couches logicielles et matérielles. De plus, les différences de vitesse de commande et d'exécution entre les équipements, qui peuvent également utiliser différents protocoles et moyens de communication, compliquent cette tâche. Pour surmonter ces défis de synchronisation, nous adoptons une stratégie de délocalisation de la synchronisation hors de l'ordinateur, en utilisant des signaux analogiques comme vecteurs. Les instruments de mesure disposent de mémoires internes (buffers) pour stocker les données et les commandes. Nous configurons ces équipements pour qu'ils attendent un signal sur leur entrée TTL, puis acquièrent des signaux ou exécutent des commandes. Cette méthode d'exécution via signal physique TTL est une implémentation matérielle extrêmement rapide et synchronisée, couramment disponible dans de nombreux équipements scientifiques de haute qualité. Les données de mesure sont ensuite transférées vers l'ordinateur via USB, Ethernet ou GPIB pour l'enregistrement et l'analyse.

La complexité inhérente au système dans son ensemble peut s'avérer intimidante, en particulier lorsqu'on se trouve face aux baies instrumentales sans guide explicatif (cf l'ensemble des nouveaux arrivants sur le projet). Pour faciliter le développement, la compréhension, l'utilisation et les évolutions futures du système, une description détaillée a été réalisée sous forme de diagrammes instrumentaux. Ces diagrammes illustrent clairement les instruments, les signaux et les connexions, tout en segmentant le système en sous-ensembles dédiés à des fonctions instrumentales spécifiques. Cette approche structurée est mise en évidence dans les figures 17, 18, 19, 20 et 21, facilitant ainsi la navigation à travers la complexité du système.



**Figure 17:** Schéma instrumental de la partie AFM du système de mesure. Celui-ci est articulé autour d'un DAQ NI 6343 pour le contrôle de la position xyz de l'échantillon avec un lock-in pour la rétroaction sur Z. Deux sous-systèmes sont conçus et fabriqués en interne, l'amplificateur transimpédance et le sommateur analogique. Les moteurs pas à pas (stepper) permettent quant à eux l'approche grossière.



**Figure 18:** Schéma instrumental de la partie détection optique du système. afin de permettre de découpler les différentes mesures, le signal provenant des deux photodiodes avalanches est répétés via un amplificateur de distribution vers les différents équipements de mesure. Il est à noter que pour les mesures quantitatives deux sorties correspondent à une fonction OU entre les entrées A et B afin de profiter du signal complet. La gestion de la position de l'objectif est effectuée par un second DAQ 6343 qui mesure la fluorescence et contrôle le scanner piézo de l'objectif. Cette section sert donc à la recherche du centre NV et son verrouillage dans le point focal de l'objectif.

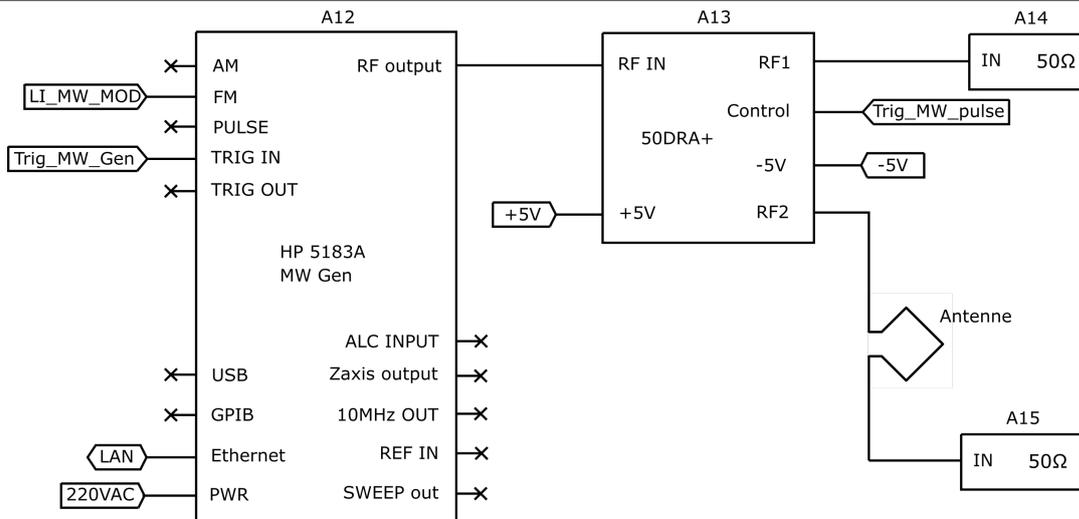


Figure 19: Schéma instrumental du circuit micro-ondes.

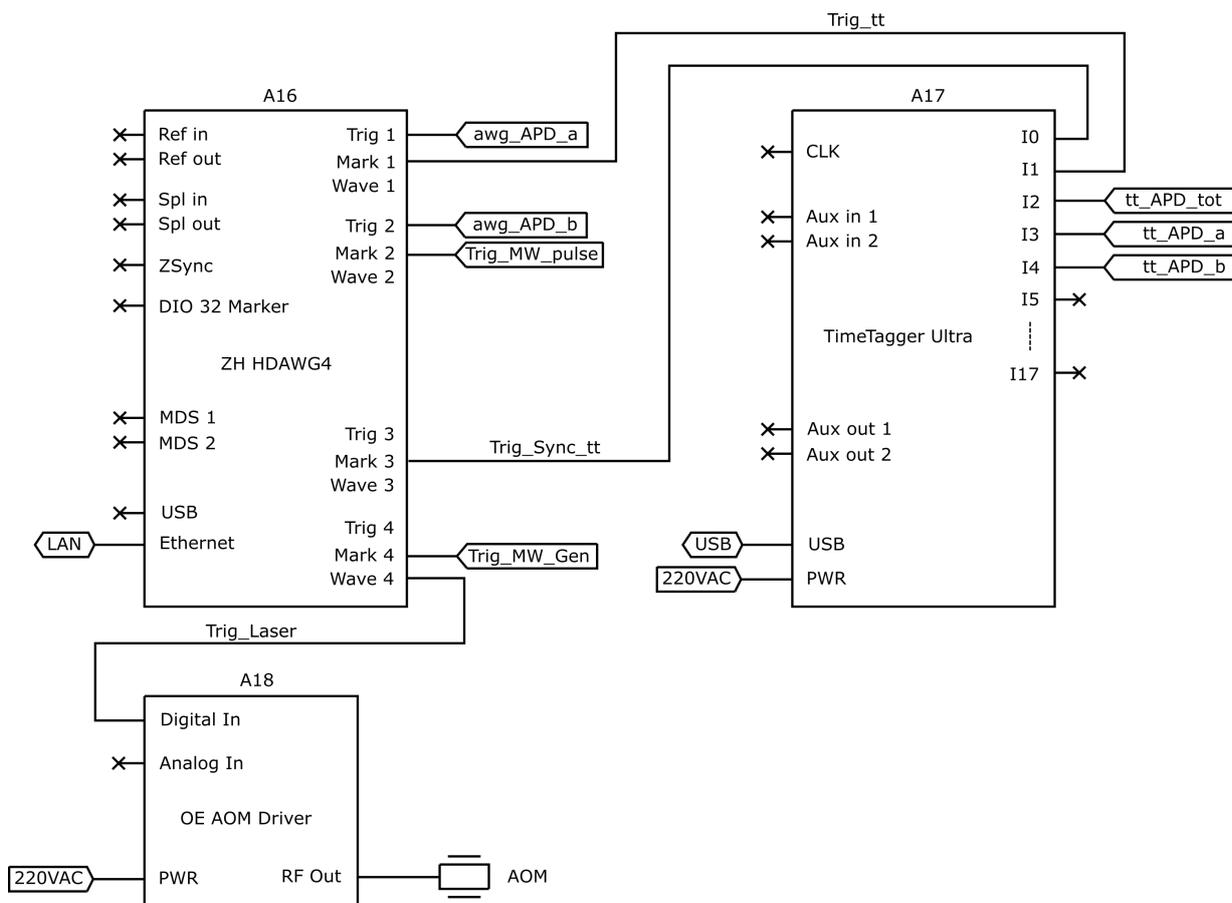
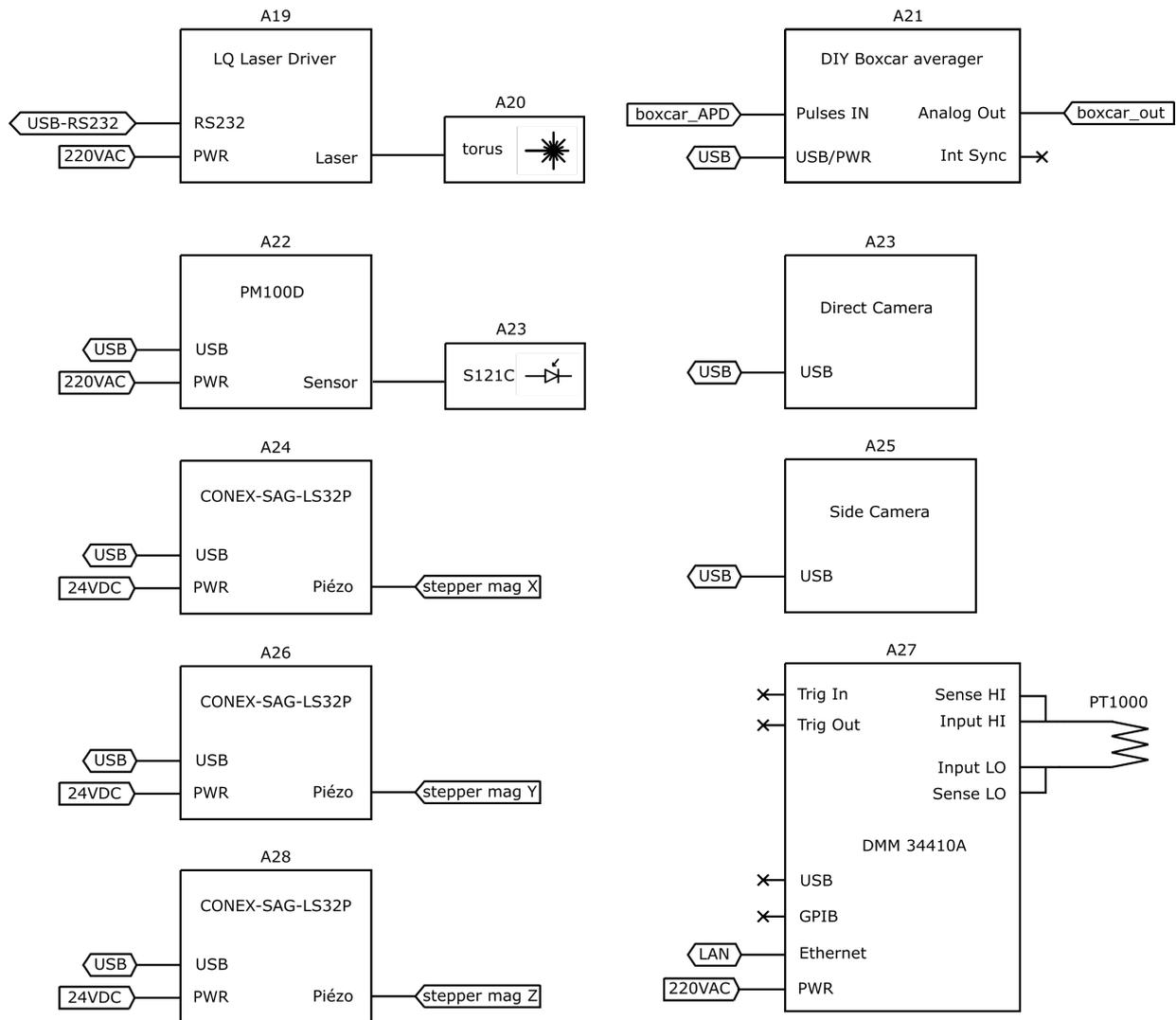


Figure 20: Schéma instrumental de séquençage permettant la synchronisation des différentes mesures et instruments.



**Figure 21:** Schéma instrumental des différents autres équipements : driver du laser, boxcar averager, contrôleurs des moteurs piézos de l'aimant, caméras ainsi que la mesure de température via PT1000.

En segmentant les mesures en sous-mesures prises en charge par certains équipements et en laissant d'autres sous-mesures à d'autres équipements, nous pouvons réaliser des mesures de haute résolution temporelle tout en bénéficiant de la flexibilité offerte par les commandes informatiques. L'architecture logicielle de commande de notre système joue un rôle crucial, alliant maintenabilité et flexibilité. Pour cela, nous avons choisi Python comme langage de programmation. Bien que Python présente une courbe d'apprentissage plus abrupte par rapport à des langages visuels comme LabView, il offre un contrôle plus précis des actions et des sous-processus, un avantage indéniable pour notre projet.

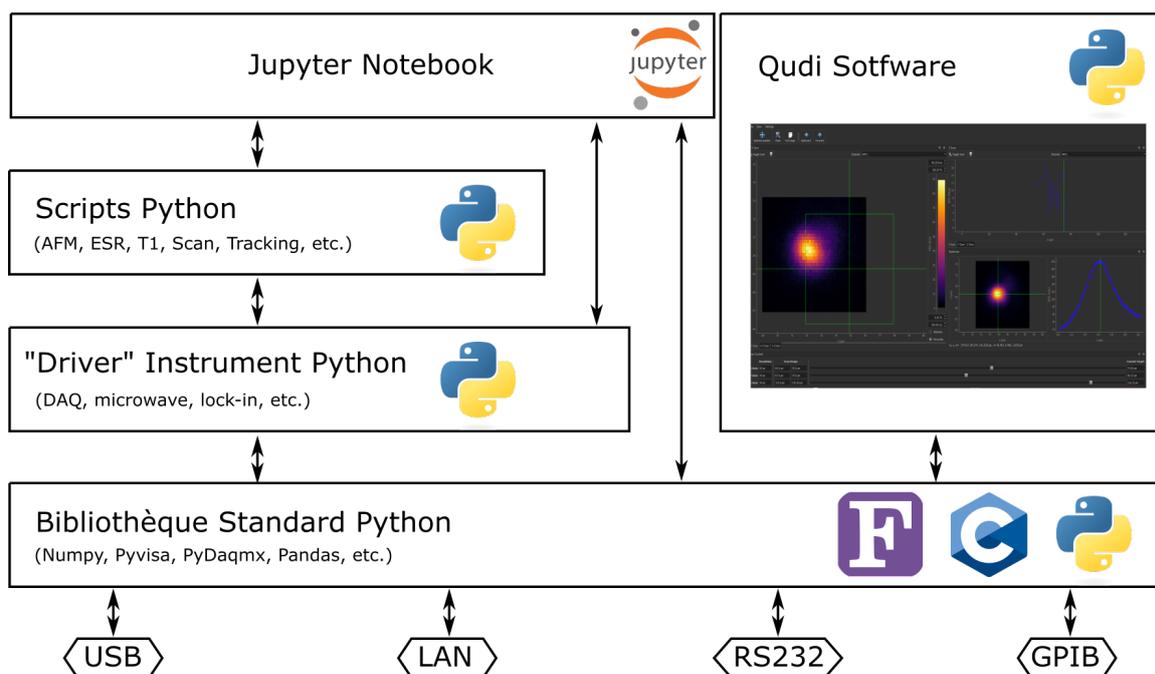
L'architecture logicielle de notre système de mesure est conçue pour optimiser la maintenabilité et la flexibilité. Le logiciel de commande, entièrement développé en Python, offre un contrôle précis sur les actions et sous-processus du système. Cette approche, bien que plus complexe que des langages visuels tels que LabView, permet une gestion détaillée des opérations, figure 22.

Chaque instrument de mesure est contrôlé par un fichier spécifique, qui débute par une phase d'initialisation pour établir la communication avec l'instrument. Ces fichiers regroupent ensuite les fonctions spécifiques à chaque instrument. Par exemple, le fichier

“HDAWG” comprend une fonction complexe “HDAWG-Rabi” pour orchestrer des protocoles d’impulsions sur quatre canaux du séquenceur. Ces fichiers sont organisés dans un dossier dédié nommé ‘Instruments’.

Les scripts de mesure, eux, sont conçus pour orchestrer l’utilisation de différents instruments dans le but de réaliser des mesures spécifiques. Le script “Rabi”, pour poursuivre l’exemple, combine les sous-programmes “HDAWG” et “Timetagger” pour préparer les instruments aux protocoles de mesure Rabi. Ces scripts peuvent également interagir avec d’autres pour des opérations complexes, comme la cartographie spatiale d’un échantillon. Cette structure modulaire favorise une évolution rapide des développements logiciels, améliore la maintenabilité et rend l’ensemble plus accessible pour des projets complexes.

Un Jupyter Notebook est utilisé comme interface de contrôle principale, facilitant l’accès aux fonctions et assurant une documentation claire des mesures et méthodologies. Il guide l’utilisateur de l’initialisation du système à la réalisation de mesures standard en magnétométrie NV. Concernant l’interface graphique, la création d’une interface en Python représente un défi ambitieux. L’utilisation de PyMoDAQ, développé par le CNRS et le CEA, est envisagée pour améliorer l’expérience utilisateur, en offrant une interface intuitive pour les mesures en Python.



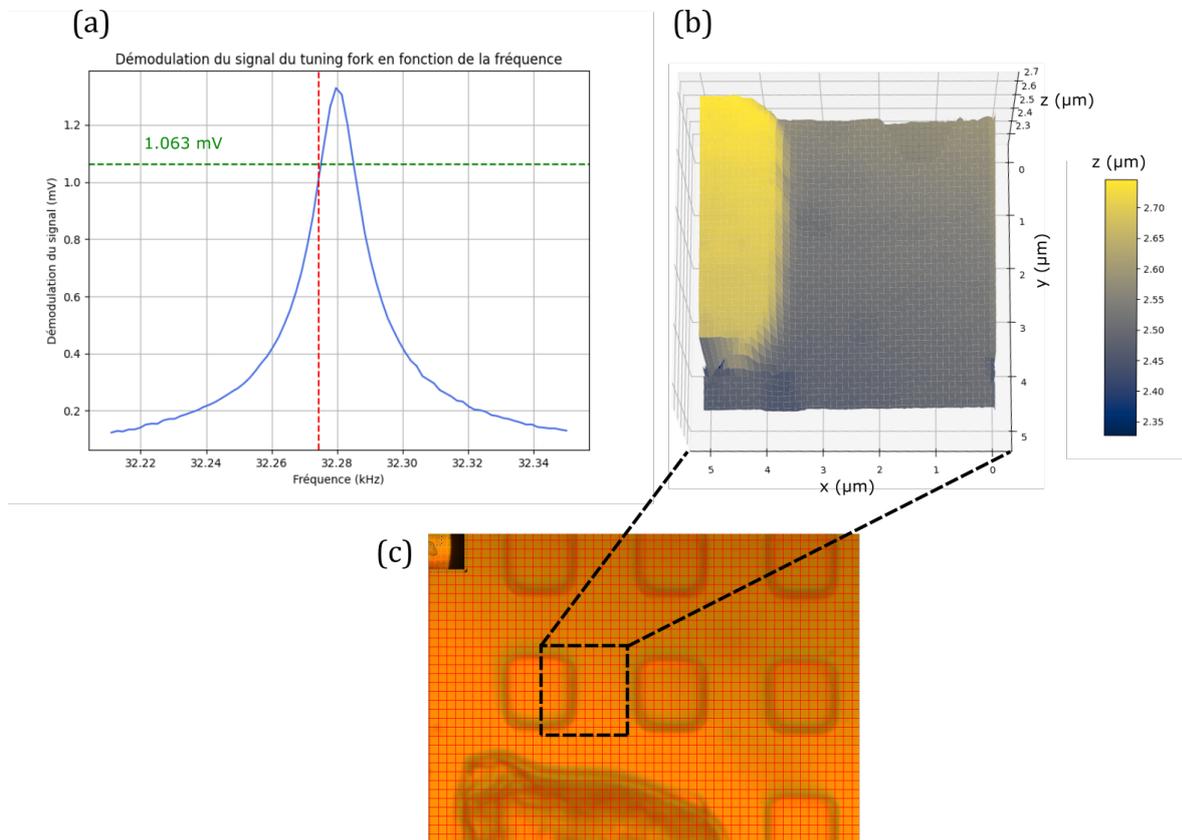
**Figure 22:** Schéma de principe logiciel du système de mesure. Le positionnement de l’objectif par rapport à la pointe est assuré par un logiciel externe Qudi. La structuration par sous-programmes en couche permet de séparer les sections de contrôle et les sections de réalisation de certains protocoles. Afin d’éviter les complications liées à la création d’une interface utilisateur, l’ensemble des développements et mesures sont réalisés par une console Jupyter Notebook.

## 2.2.6 protocoles et méthodologies de mesures

À ce stade, nous disposons de sous-ensembles matériels et d’une structure logicielle capables de réaliser des mesures optiques sur le centre NV et de déplacer des échantillons sous

celui-ci pour effectuer des cartographies AFM et de magnétométrie. Il est donc crucial de comprendre le fonctionnement de ces différents systèmes et protocoles pour acquérir des données de mesure fiables.

### Mesure AFM



**Figure 23:** (a) Résonance du tuning fork hors contact, afin de déterminer la fréquence de résonance on réalise un balayage en fréquence et on mesure le courant traversant le diapason. Ici la fréquence est d'environ 32.28kHz et reste fixe pour les mesures. On fixe une consigne du PID à 80% correspondant à une amplitude de 1.063mV qui va alors diminuer la distance avec l'échantillon jusqu'à ce que cette valeur soit atteinte et maintenue.(b) Mesure de topographie AFM grâce à une grille de calibration munie de carrée de 5μm coté pour environ 300nm de profondeur.(c) Image au microscope optique de ce même échantillon de référence.

Concernant les mesures AFM de topographie, le principe repose sur la détermination de la position relative de la pointe par rapport à l'échantillon en Z pour chaque couple de positions XY. La variation de cette position Z nous donne la topographie locale. Les positions XY sont commandées par le logiciel via le DAQ, et la lecture de Z provient du signal de correction appliqué par le PID converti en position par le contrôleur du pico-cube. Cette stratégie permet de bénéficier de la flexibilité du DAQ pour le contrôle de la position, tout en externalisant la rétroaction via le couple Lock-in/sommateur pour obtenir la réponse la plus rapide et la plus robuste possible. Le contrôleur piézo, grâce à ses capteurs capacitifs, offre une résolution de 0.1nm avec une répétabilité minimale de 50nm sur la plage de positionnement complète, permettant ainsi d'obtenir des cartographies de

topographie directe sur des volumes de  $5 \times 5 \times 5 \mu\text{m}^3$ .

La procédure de mesure débute par la détermination précise de la fréquence de résonance du diapason de la pointe AFM et de l'amplitude de vibration correspondante, lorsque la pointe est éloignée de l'échantillon. On fixe ensuite la fréquence d'excitation à cette fréquence de résonance. Le lock-in est utilisé pour générer un signal analogique de correction basé sur l'erreur du PID, réglé pour que l'amplitude de démodulation soit une fraction (typiquement 80 %) du signal à résonance. L'approche de l'échantillon est réalisée de manière automatique en diminuant progressivement la séparation avec la sonde jusqu'à satisfaire la consigne du PID. Cette phase d'approche se déroule généralement au milieu de la course x et y du scanner piézo. La valeur du signal d'erreur pour le verrouillage est choisie pour être dans la mesure du possible à 50% de la plage de valeur de la rétroaction afin de maximiser les chances de scan réussies en faisant en sorte que la rétroaction puisse couvrir de la même manière des variations de topographies positives et négatives, figure 23.

L'ensemble de ces protocoles et une partie des équipements étant faits maison, il est évident que la première mise en place de ce protocole avec une pointe AFM-NV coûteuse a nécessité un contrôle de soi intense. Des garde-fous logiciels ont été implémentés, notamment après un incident où une faute de frappe a causé un déplacement excessif des moteurs piézo pas-à-pas (d'un facteur 10), détruisant une pointe et une antenne.

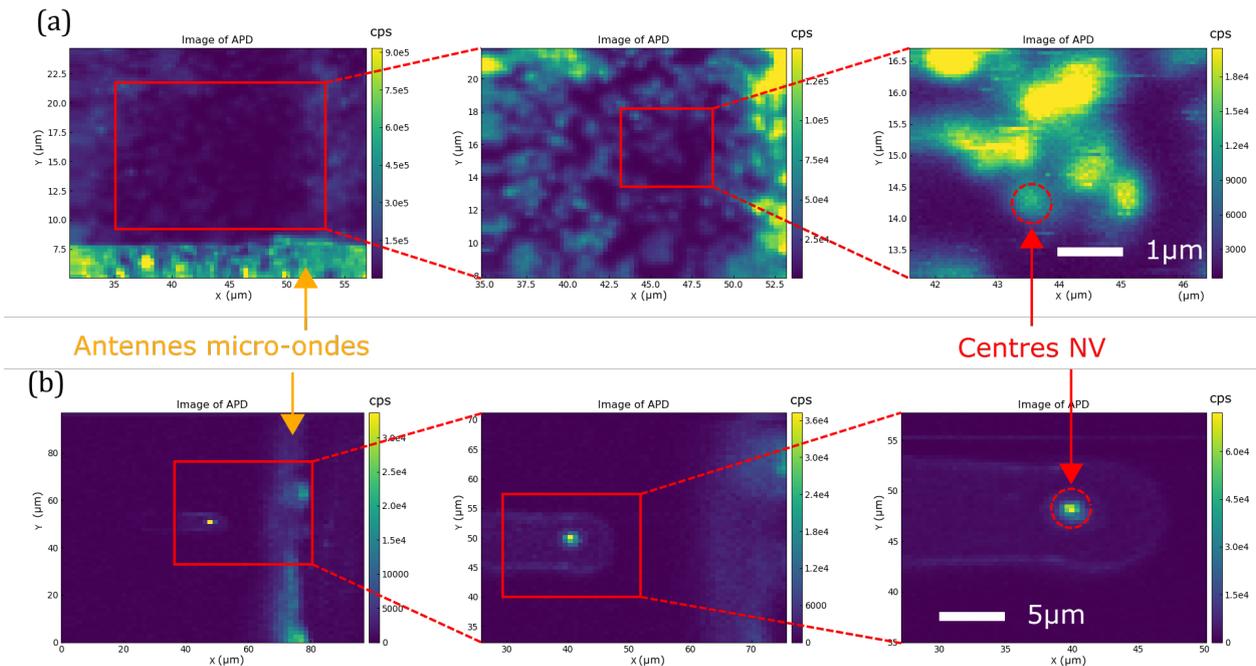
Une fois le verrouillage effectué, on peut lancer un balayage de topographie et/ou de magnétométrie de l'échantillon. Une sonde PT1000 vissée sur la table optique, couplée à un multimètre numérique, sert de système de mesure de température pour surveiller les variations thermiques pouvant affecter les mesures de part les dilatations thermiques des équipements.

### Mesure de fluorescence spatiale et verrouillage

Lorsque l'on souhaite analyser un centre NV unique, la première mesure à effectuer est une cartographie de la fluorescence de la pointe AFM afin de localiser la position de la fluorescence maximale, correspondant potentiellement à un centre NV.

Dans ce cas, le DAQ est utilisé pour contrôler les scanners piézo responsables du déplacement de l'objectif du microscope. La mise en place de ces mesures est relativement simple. On verrouille la position du scanner de l'objectif à mi-course dans chacun de ses axes. Ensuite on utilise la projection de l'image de la pointe via l'illumination laser de l'objectif pour positionner la pointe au point focale de l'objectif via des actionneurs manuels. On utilise ensuite l'actionneur miroir responsable du positionnement de l'antenne afin de l'amener au plus près de la pointe. Une fois fait, on peut alors utiliser le logiciel Qudi pour observer la fluorescence en fonction de la position dans l'espace de l'objectif pour cartographier la fluorescence de la pointe et trouver le centre NV, cf figure 24.

Une fois que la position du maximum de fluorescence est déterminée, le système doit maintenir cette position relative objectif/pointe dans le temps et être résistant aux dérives thermiques via une technique de suivi. Cette technique repose sur un algorithme de verrouillage sur un maximum local assez simple. Une fois qu'une position de maximum est trouvée, l'algorithme enregistre les coordonnées XYZ, puis déplace successivement la position en X d'un pas  $\pm dx$ , créant ainsi trois positions ( $X - dx, X, X + dx$ ). Il va alors se verrouiller sur la position où la fluorescence est maximale. Ensuite, l'algorithme répète ces opérations sur l'axe Y, puis sur l'axe Z, avant de recommencer le processus depuis le début. En utilisant un pas de déplacement assez petit, par exemple de 50 nm, et en allouant un temps de mesure suffisamment long, comme 500 ms, cet algorithme assure le suivi des dérives lentes du systèmes et n'interfère pas avec les mesures optiques du centre NV, plus rapides.



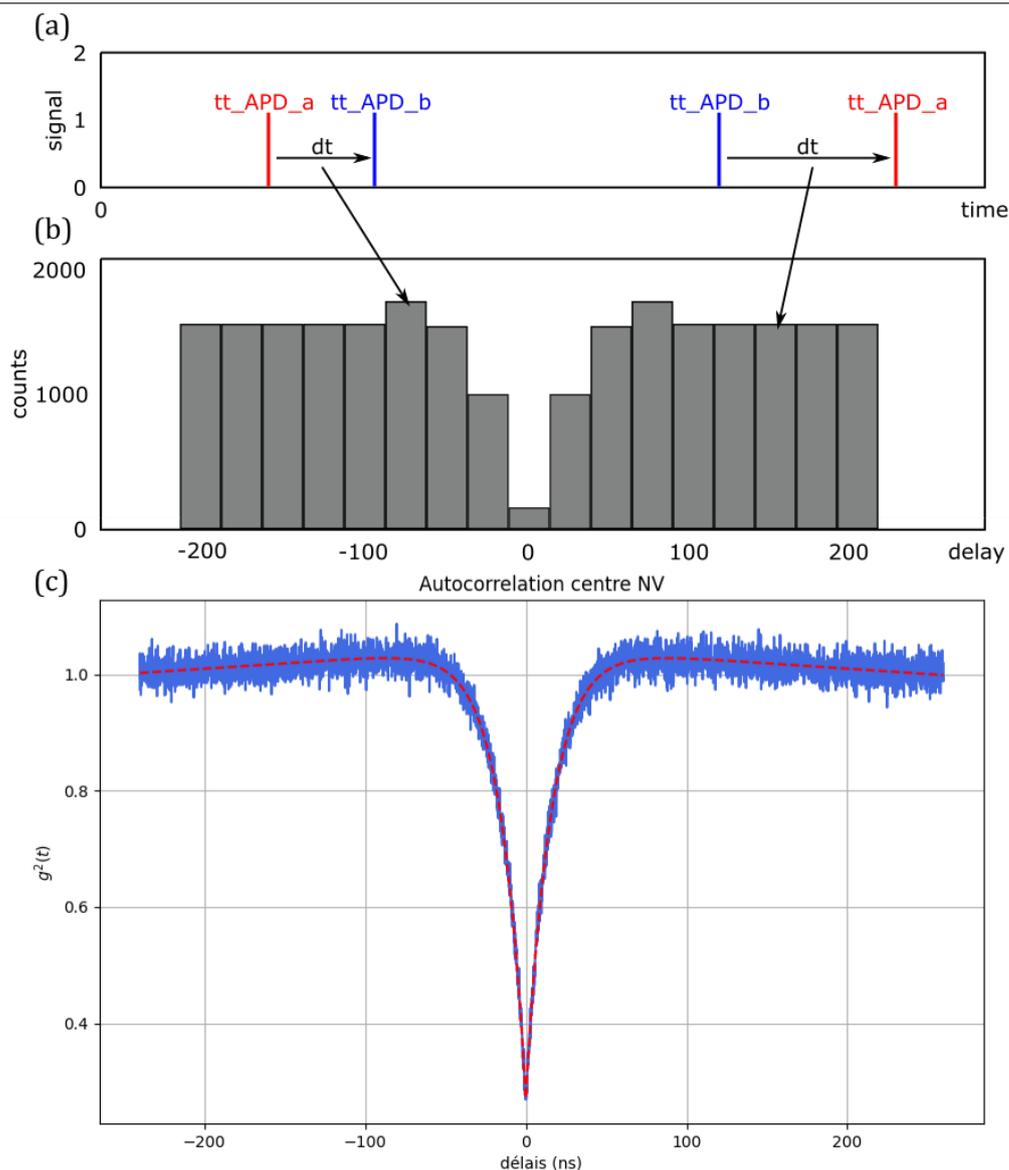
**Figure 24:** Série de cartographies de fluorescence, d'agrandissements croissants, acquise via le système confocal. On observe le taux de fluorescence, nombre de détections discrètes par seconde (coups par seconde) en fonction de la position  $xy$  de l'échantillon NV. (a) Exemple sur un échantillon où des nanodiamants sont positionnés sur une plaque de verre avec une antenne lithographiée directement dessus. (b) Exemple sur une pointe AFM-NV de QZabre, utilisée dans la suite des expériences, on observe bien la position du centre NV unique en centre de pointe. Dans les deux cas on observe clairement la fluorescence des antennes micro-ondes, en or pour (a) et aluminium pour (b).

### Mesure d'autocorrelation

Dans la majorité des mesures de précision que l'on souhaite effectuer via la magnéto-métrie NV, il est nécessaire qu'il y ait un seul centre NV dans la pointe AFM. Il est nécessaire de vérifier ce point avant toute mesure via le système.

La méthodologie permettant de démontrer la présence d'un seul centre NV est la mesure de l'autocorrélation de la fluorescence du centre NV en utilisant un montage Hanbury Brown et Twiss. Le temps de vie fini de l'état électronique excité du centre NV (environ 12ns) impose à un centre unique d'émettre les photons un par un. cela se traduit par un dégroupement de photons à délai nul sur la fonction d'autocorrélation qui mesure la probabilité de détection de deux photons avec un intervalle  $\tau$ .

Pour cela nous utilisons des photodiodes avalanche à très faible bruit, très sensibles et en même temps extrêmement rapides. La méthodologie consiste à utiliser deux photodiodes avalanches qui analysent chacune 50% du faisceau. On peut alors observer le temps caractéristique entre deux détections par les deux photodiodes, ce qui correspond à une mesure d'autocorrélation de la fluorescence, cf figure 25. La valeur de cette courbe à  $t = 0$  nous permet alors de conclure s'il y a un seul centre NV dans la pointe. Une règle empirique permet de certifier la présence d'un centre unique lorsque,  $g_2(0) < \frac{1}{2}$ . D'autres propriétés des centres NV peuvent être déterminées via cette mesure de  $g_2(0)$ , en utilisant un modèle à trois niveaux pour décrire le centre NV on peut alors déterminer les taux de transitions entre les différents niveaux pour recréer un modèle ajusté du centre NV mesuré, [33].



**Figure 25:** (a) Représentation des impulsions des deux capteurs APD et des temps entre les impulsions. (b) Histogramme des délais correspondant. (c) Mesure d'autocorrelation d'un centre NV unique via cette technique.

### Mesure de saturation

La saturation du centre NV est un paramètre crucial pour la conduite des mesures, car elle détermine l'intensité de la fluorescence du NV en fonction de la puissance du laser d'excitation. Selon le type de mesure envisagé, il peut être nécessaire d'optimiser le temps de mesure en augmentant le taux de fluorescence, ou au contraire, de limiter la puissance du laser pour des raisons spécifiques. La courbe de saturation fournit une référence essentielle pour ajuster ces paramètres.

Le laser utilisé (laser quantum torus 532 nm 50 mW) ne permet pas un contrôle direct de sa puissance optique via des commandes numériques, mais seulement un contrôle du courant électrique qui l'alimente. Pour mesurer la puissance laser effective, il est nécessaire d'utiliser un capteur externe calibré (Thorlabs PM100D et S120C). Profitant du fait qu'une partie du faisceau laser traverse le miroir dichroïque, le capteur est placé sur ce trajet. Une étape de calibration préalable est nécessaire pour établir la correspondance

entre la puissance laser traversant le miroir dichroïque et celle réfléchi, qui est celle atteignant le centre NV.

La mesure de saturation consiste donc à enregistrer le signal de fluorescence en fonction de la consigne de courant du laser. L'analyse des données, après application des correspondances de calibration, permettra de déterminer la fluorescence du centre NV en fonction de la puissance laser d'excitation. Cette approche permet d'ajuster précisément la puissance du laser pour les besoins spécifiques de chaque expérience, en tenant compte des contraintes matérielles du système.

### Mesure de spectres RPE et orientation

L'observation d'un point de fluorescence ne permet évidemment pas de conclure que l'on observe un centre NV. La méthodologie de vérification la plus simple est la mesure de résonance paramagnétique électronique par ODMR. Dans les faits, cela signifie que l'on mesure la fluorescence à l'aide d'un système de comptage de photons défini dans le temps (Swabbian Instrument Time Tagger Ultra) synchronisé avec le générateur micro-onde du système. Le chef d'orchestre de ces mesures est un générateur arbitraire haute fréquence (Zurich Instruments HDAWG), utilisé ici comme un séquenceur pour synchroniser les différents instruments.

On définit alors sur notre logiciel les paramètres du balayage en fréquence que l'on souhaite effectuer : la fréquence micro-onde minimale, la maximale, son amplitude, le pas de fréquence et le temps de mesure de fluorescence pour chacun de ces pas. Le protocole est relativement simple, l'HDAWG va envoyer une impulsion au générateur micro-onde qui va le "réveiller" et lui dire de se tenir près au balayage, il va aussi envoyer une impulsion au module de comptage pour lancer la mesure. Puis chacune des impulsions suivantes va indiquer au générateur que l'on change de fréquence micro-onde. Entre chacune de ces impulsions on mesure le signal de fluorescence à la fréquence correspondante via le compteur pendant un temps déterminé, généralement 20 ms, puis on change de fréquence micro-ondes et on répète la mesure pour un ensemble discret de fréquences micro-ondes.

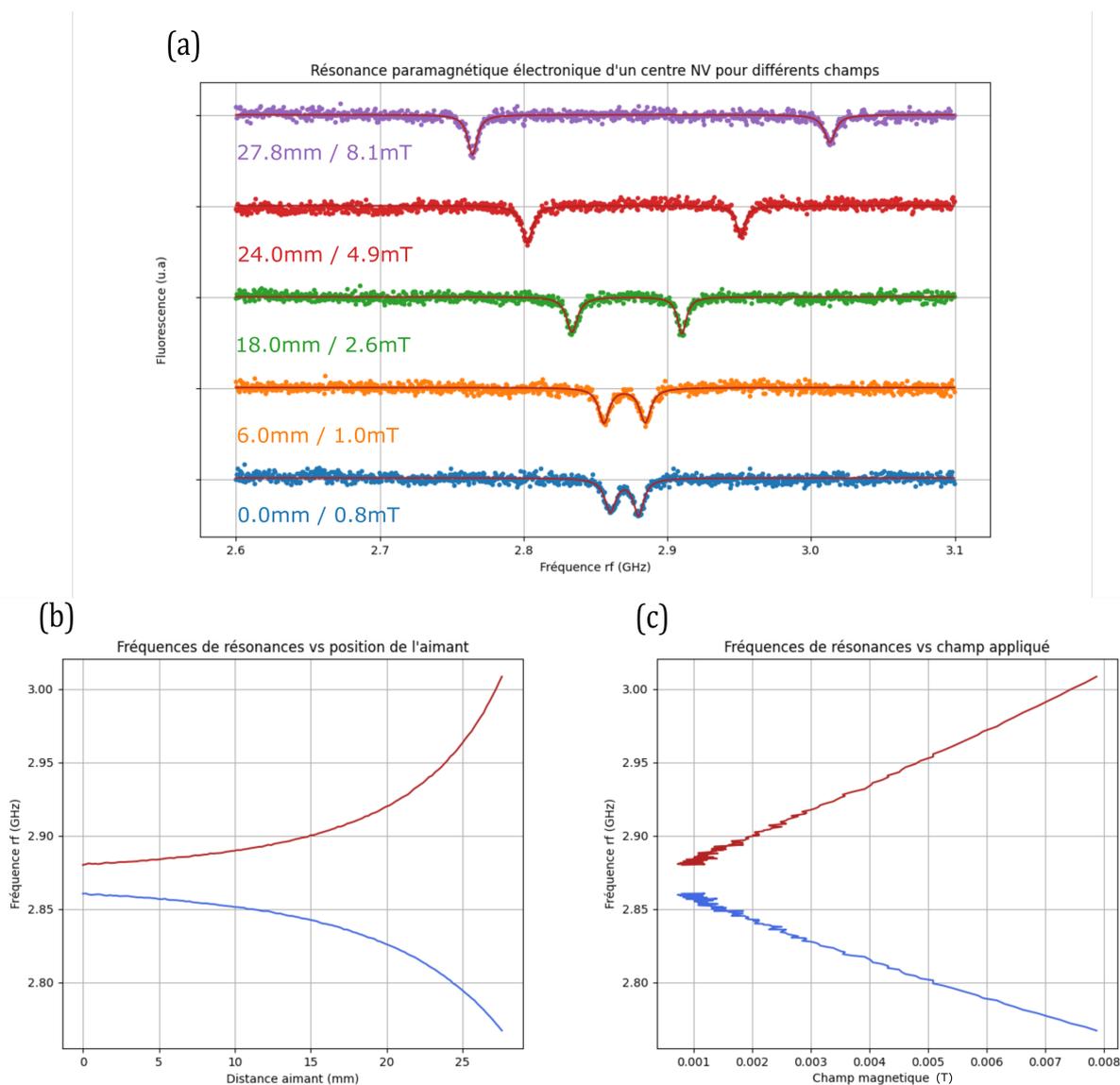
Le pas de fréquence de générateur et le nombre de bin correspondant du compteur ont été définis en avance de telle manière à ce que la mesure puisse se faire en autonomie, c'est à dire que le paramétrage et l'activation du protocole sont faits par l'ordinateur, mais les mesures et variations de fréquence sont effectuées en autonomie par le séquenceur, le générateur et le compteur. C'est à la fin d'un certain nombre de séquences que l'ordinateur va venir récupérer les données de mesures auprès de la mémoire du compteur.

Bien évidemment, la mesure complète est moyennée un grand nombre de fois pour améliorer le rapport signal sur bruit, donc le cycle balayage de fréquence complet est répété un grand nombre de fois, toujours en toute autonomie. Cependant, l'ordinateur peut venir interroger la mémoire tampon du compteur à tout instant sans perturber la mesure, si l'expérimentateur souhaite accéder aux données durant la mesure.

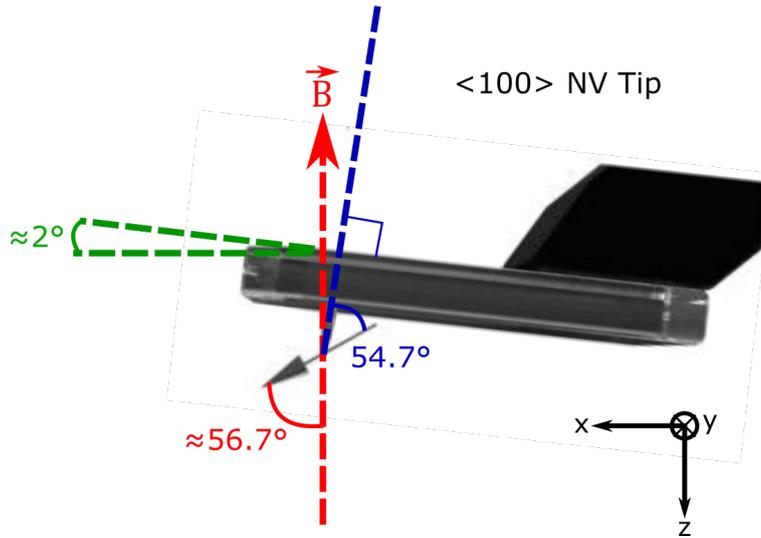
L'ensemble des autres protocoles de mesures pulsées, que nous aborderons dans la suite de ce chapitre, permettant de mesurer différentes propriétés du centre NV reposent sur la même architecture logicielle et matérielle.

Comme nous l'avons présenté précédemment, la mesure de résonance magnétique permet de remonter au champ magnétique externe. Avant de passer à la magnétométrie, nous allons utiliser cette possibilité pour caractériser un aimant permanent qui va nous permettre d'appliquer des champs magnétiques statiques sur l'expérience. Une fois calibré il nous servira de plus à déterminer l'orientation du centre NV. Un aimant permanent monté sur des moteurs piézo pas à pas est utilisé pour générer ce champ. A des distances supérieures à son diamètre, celui-ci se comporte comme un dipôle magnétique orienté dans la direction de l'axe optique. La position initiale de l'aimant par rapport au centre NV étant peu précise, il faut convertir cette position en champ dans nos protocoles de mesure.

Les orientations des centres NV dans les pointes peuvent varier considérablement, sans compter l'alignement de la pointe elle-même dans le système, qui peut être compliqué en raison de ses faibles dimensions. La détermination de l'orientation du centre NV consiste à aligner l'aimant avec l'axe optique, puis à varier sa distance par rapport au centre NV et à acquérir un spectre RPE à chaque point, cf figure 26. On peut alors utiliser les équations de la section 1.3.2 pour calibrer le champ appliqué en faisant correspondre la distance de l'aimant avec une valeur de champ, mais aussi pour déterminer l'orientation du centre NV par rapport à l'axe de déplacement de l'aimant et donc par rapport à l'axe optique, comme illustré figure 27.



**Figure 26:** Détermination de l'orientation du centre NV. (a) mesures ODMR pour différentes positions de l'aimant. Les champs correspondants calculés dans un second temps sont indiqués. (b) Position des fréquences de résonances en fonction de la position relative de l'aimant. (c) Après ajustement du modèle, on obtient alors les fréquences de résonances en fonction du champ avec une valeur de  $\theta \approx 56.7^\circ$ .



**Figure 27:** La mesure de l'orientation de la pointe AFM-NV sous champ magnétique révèle un angle d'environ  $56.7^\circ$  entre l'orientation du champ et l'axe NV. Les spécifications fournies par le fabricant indiquent l'orientation de l'axe NV par rapport à l'axe de la pointe, qui est d'environ  $54.7^\circ$  pour une pointe QZabre dans notre cas. La différence de ces deux valeurs, soit environ  $2^\circ$ , indique le degré de désalignement entre ces axes. Dans notre configuration, cet écart est probablement dû à un léger angle dans le positionnement de la pointe. L'orientation du champ est figurée en rouge, l'axe de la pointe est en bleu et le désalignement est figuré en vert.

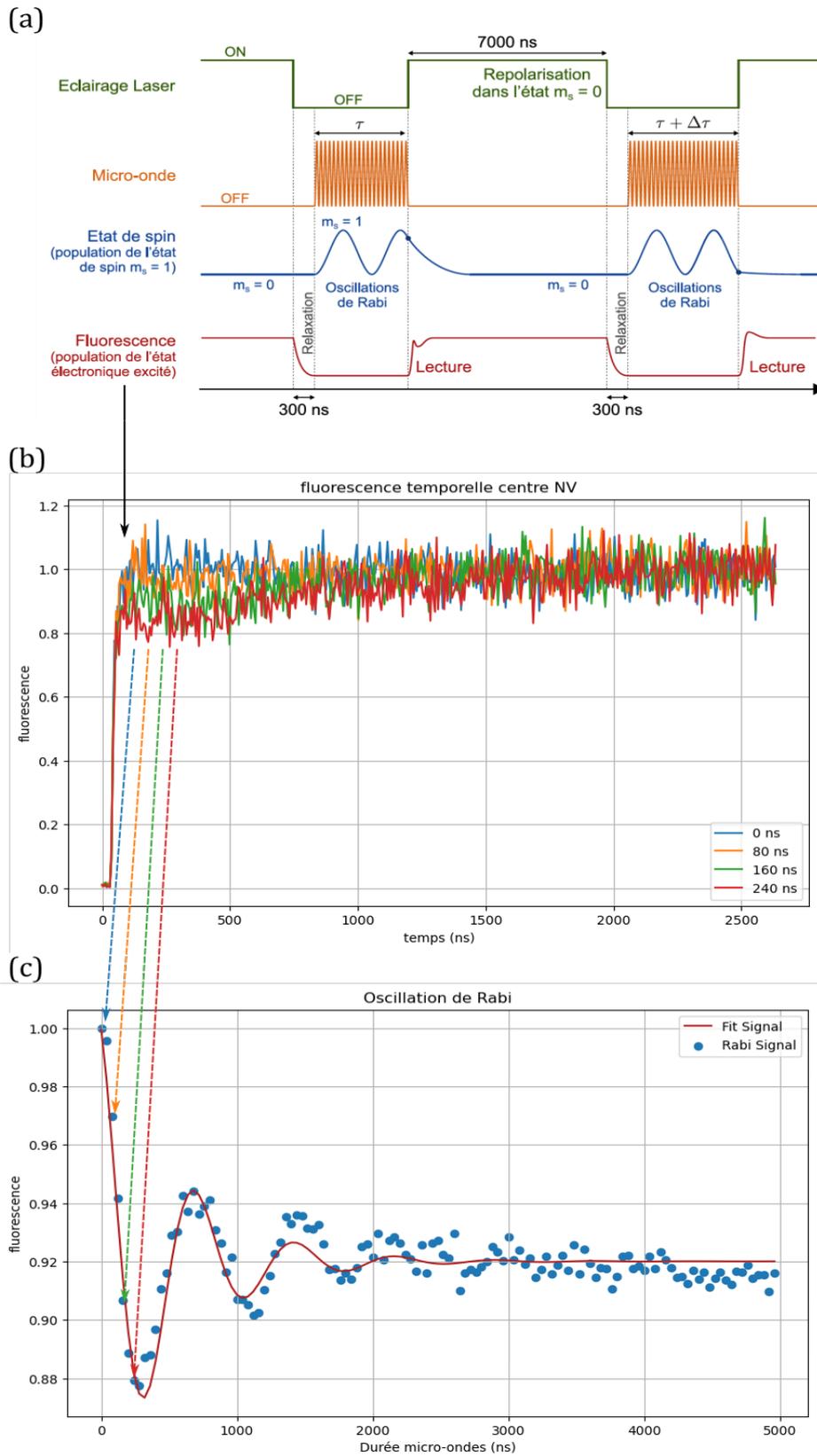
### Mesure des oscillations Rabi

Il est important pour la suite des protocoles de mesure pulsés de réaliser des mesures du temps de cohérence  $T_2^*$ . Le protocole de mesure vise ici à mettre en évidence des oscillations de Rabi correspondant à des mesures de précession libre.

Le protocole implique une séquence de deux impulsions laser : une première impulsion longue (environ  $6 \mu\text{s}$ ) pour initialiser le centre NV dans l'état  $|m_s = 0\rangle$ , suivie d'une seconde impulsion brève (de l'ordre de  $1 \mu\text{s}$ ) pour lire l'état du spin. Le délai  $\tau$  entre lequel est appliquée une impulsion micro-onde est progressivement augmenté, et la séquence est répétée (typiquement  $10^7$  fois) pour obtenir une moyenne fiable de la fluorescence. Ainsi, on peut tracer la courbe de fluorescence en fonction de  $\tau$  et déterminer le temps de cohérence  $T_2^{\text{Rabi}}$ , comme illustré figure 28.

Le protocole Rabi est plus complexe que les précédents, nécessitant une synchronisation précise des impulsions laser et micro-ondes, ainsi qu'une mesure temporelle de haute résolution. Il est essentiel de tenir compte des délais de propagation des signaux optiques et micro-ondes, ainsi que des temps de réponse des équipements. Toujours dans la même optique que précédemment, la synchronisation des mesures est assurée par le séquenceur.

L'analyse des impulsions optique de lecture du centre NV se fait en intégrant la fluorescence des 500 premières nanosecondes correspondant à chaque durée  $\tau$ . Celle-ci est proportionnelle à l'état du spin. La mesure des oscillations de Rabi donne accès au temps de cohérence du NV, qui va donner la sensibilité en champ magnétique finale. De plus la connaissance de la fréquence de Rabi, proportionnelle à l'intensité micro-ondes, permet de calibrer la durée des impulsions permettant de basculer le spin ou de le préparer dans un état superposé ( $\pi$  et  $\frac{\pi}{2}$ ).



**Figure 28:** (a) Protocole de mesure d'oscillation Rabi, une impulsion micro-onde de durée croissante est appliquée. (b) Mesures temporelles de fluorescences consécutives à différentes durées d'impulsion micro-ondes. Figure issue de [34]. (c) L'intégration des premières 500 ns est proportionnelle à l'état du spin après une impulsion micro-onde de durée  $\tau$ . Dans le cas présent  $T_2^* = 3.5\mu S$ .

L'analyse des propriétés des centres NV et leur utilisation pour mesurer et analyser des échantillons magnétiques nécessitent l'implémentation de divers protocoles. Pour fournir une vue d'ensemble claire de l'état de l'art des principaux protocoles et pour faciliter la transmission de ces connaissances aux futurs chercheurs qui poursuivront ce projet, il est pertinent d'aborder brièvement les protocoles clés qui sont en cours de développement ou qui seront probablement nécessaires à l'avenir pour cet instrument.

### Protocoles pulsés

Les protocoles impulsions tels que Ramsey, l'écho de Hahn et les séquences CPMG (Carr-Purcell-Meiboom-Gill) sont essentiels pour accéder à des paramètres clés des centres NV, notamment les temps de relaxation  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_2^*$ . Bien que ces protocoles diffèrent dans leur conception et leur objectif, leur mise en œuvre matérielle et logicielle présente des similitudes notables, en particulier avec le protocole de Rabi.

Ces protocoles reposent sur des séquences d'impulsions laser et micro-ondes soigneusement synchronisées. Du point de vue matériel, cela implique l'utilisation de dispositifs capables de générer et de contrôler ces impulsions avec une grande précision. Les séquenceurs et les compteurs jouent un rôle crucial dans la gestion de la synchronisation et de la mesure des signaux.

Sur le plan logiciel, bien que chaque protocole nécessite une programmation spécifique pour orchestrer les séquences d'impulsions et les mesures correspondantes, la base logicielle reste similaire à celle utilisée pour le protocole de Rabi. Cela inclut la gestion des délais de propagation des signaux, la synchronisation des impulsions laser et micro-ondes, ainsi que la collecte et l'analyse des données de fluorescence.

En résumé, bien que les protocoles de Ramsey, d'écho de Hahn et CPMG aient des objectifs spécifiques différents, leur mise en œuvre s'appuie sur une infrastructure matérielle et logicielle commune, permettant une intégration et une exécution efficaces au sein du système de mesure des centres NV.

## 2.3 Imagerie magnétique par extinction de fluorescence

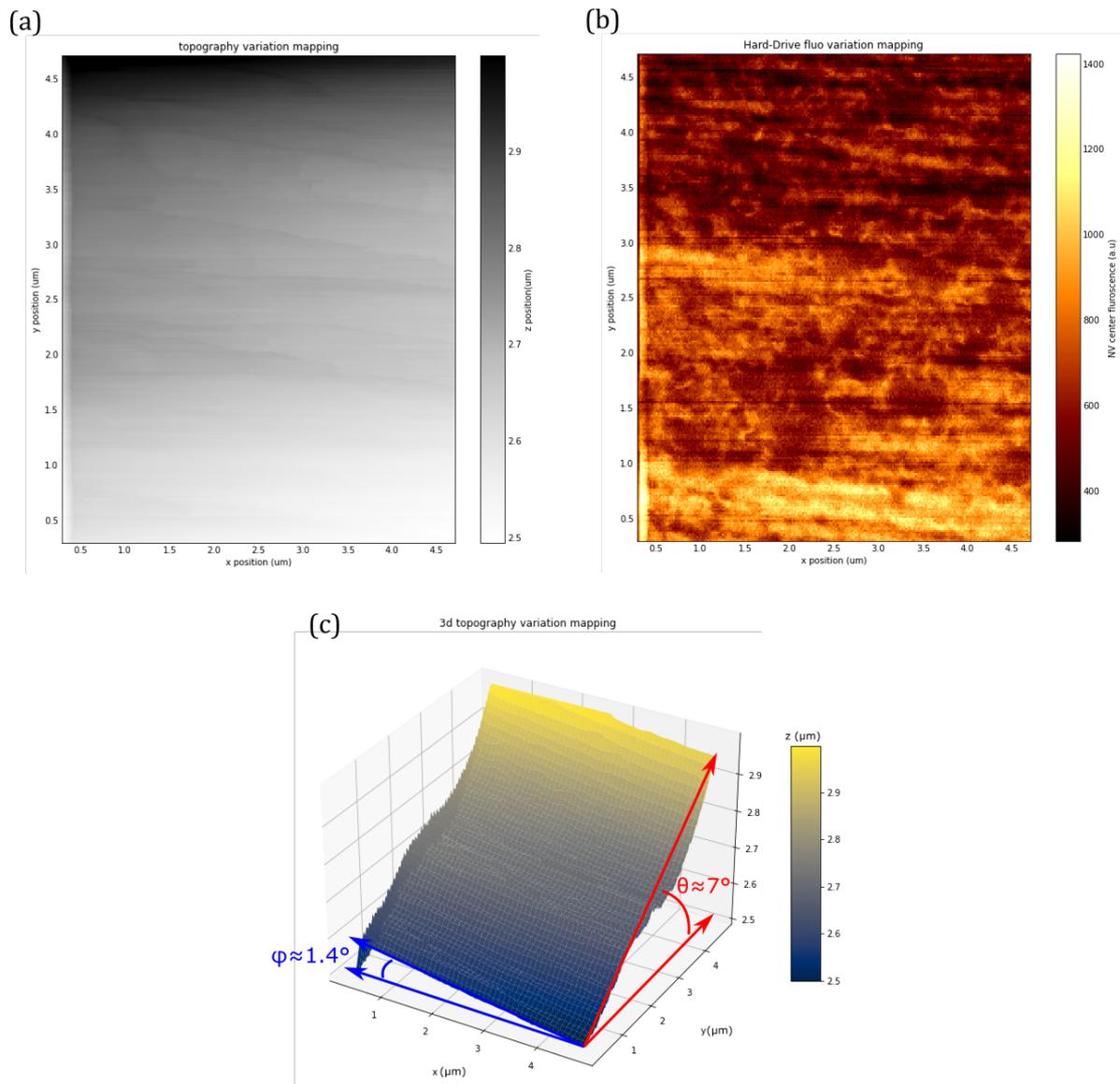
Les sections suivantes se concentrent sur les méthodes d'imagerie magnétique réalisables avec notre système de mesure. Nous commencerons par présenter les mesures effectuées en champs magnétiques forts, qui servent de pré-tests au système. Ensuite, dans la section 2.4, nous aborderons les mesures en champs faibles. Ces dernières, comme pour les protocoles impulsions mentionnés précédemment, sont en phase finale de développement mais ne sont pas encore opérationnelles au moment de la rédaction de ce document.

La méthode de magnétométrie la plus accessible dans le cadre du développement d'un microscope à centre NV est la mesure de champs forts par extinction de fluorescence. Comme expliqué dans la section 1.3.3, cette méthode utilise la variation de fluorescence du centre NV, due aux champs transverses à l'axe NV produits par l'échantillon, comme agent de contraste. Cette approche est plus simple à mettre en œuvre car elle ne nécessite que la mesure de la fluorescence du centre NV en fonction de la position relative de la pointe par rapport à l'échantillon, sans avoir besoin d'appliquer de micro-ondes sur la pointe NV ni de réaliser des protocoles d'impulsions.

### 2.3.1 Imagerie de test sur disque-dur

L'analyse des textures magnétiques issues d'un échantillon de disque dur représente un point de départ pertinent pour évaluer les capacités de notre système en matière d'imagerie. Les bits d'information, stockés magnétiquement sur ces disques, se caractérisent par des

champs de fuite importants à leur surface. Cette particularité s'explique par la nécessité, inhérente aux technologies de stockage magnétique, de rendre l'information rapidement et fiablement accessible, maximisant ainsi le signal au niveau du système de lecture. Historiquement, les têtes de lecture des disques durs fonctionnaient grâce à une bobine inductive. Cependant, avec l'avènement et l'adoption industrielle de la technologie de magnétorésistance géante (GMR) dans les années 90, la lecture s'effectue désormais au moyen de capteurs GMR, marquant une évolution significative dans la manière dont les données sont lues sur ces supports.



**Figure 29:** (a) Mesure de topographie d'un échantillon de disque dure de tests sur une fenêtre de  $4\mu\text{m} \times 4\mu\text{m}$ . On observe ici peu de reliefs topographiques mais une variation constante de la hauteur due à l'inclinaison de l'échantillon. (b) cartographie de la fluorescence du centre NV correspondante. Ici les champs de fuites intenses du disque dur vont entraîner une extinction de fluorescence du centre NV. (c) visualisation en 3d de la topographie faisant apparaître les angles de l'échantillon par rapport au repère du scanner piézo.

L'échantillon analysé dans cette étude est un fragment de disque dur amovible, précisément un modèle SyQuest EZ135 disk de 3,5 pouces et d'une capacité de 130 Mo, datant du milieu des années 90. À cette période, la taille des bits sur les supports magnétiques variait généralement entre 1 et 10 micromètres, comme le soulignent les références [35–37]. Pour notre échantillon spécifique, il est raisonnable de supposer que chaque bit occupe une surface approximative de 4 micromètres carrés. Étant donné que la fenêtre de balayage de notre scanner est de 16 micromètres carrés, il serait en théorie possible de visualiser des bits individuels ou des fragments de ceux-ci. Toutefois, en pratique, l'identification précise de ces bits est compliquée en raison de leur taille relativement grande, ce qui réduit la fréquence de répétition des structures observées, contrairement à ce que l'on pourrait attendre avec des bits plus petits et donc plus nombreux. Il est également important de noter que l'orientation de l'échantillon par rapport à l'axe du centre NV influence significativement l'image obtenue.

La mesure simultanée de la topographie et de la fluorescence de l'échantillon offre des informations précieuses. La topographie révèle une surface majoritairement plane, malgré un alignement imparfait de l'échantillon par rapport au repère du scanner. De manière intéressante, les cartographies topographiques et de fluorescence mettent en évidence des rainures presque horizontales. Ces marques pourraient être interprétées comme les traces laissées par la tête de lecture/écriture du disque dur, offrant ainsi un aperçu fascinant de l'interaction physique entre le disque et ses mécanismes de lecture.

En examinant les images de fluorescence, on peut observer des zones claires, notamment entre  $y = 2.5$  et  $3 \mu m$  ainsi qu'entre 1 et  $0.5 \mu m$ , qui se distinguent nettement sur un fond globalement plus sombre. Ces zones pourraient correspondre à des bits horizontaux, cf figure 29. Cette hypothèse est cohérente avec les informations disponibles sur la taille des bits des disques durs de cette époque. Cependant, il est difficile de tirer des conclusions définitives à ce sujet sans données supplémentaires ou une analyse plus approfondie.

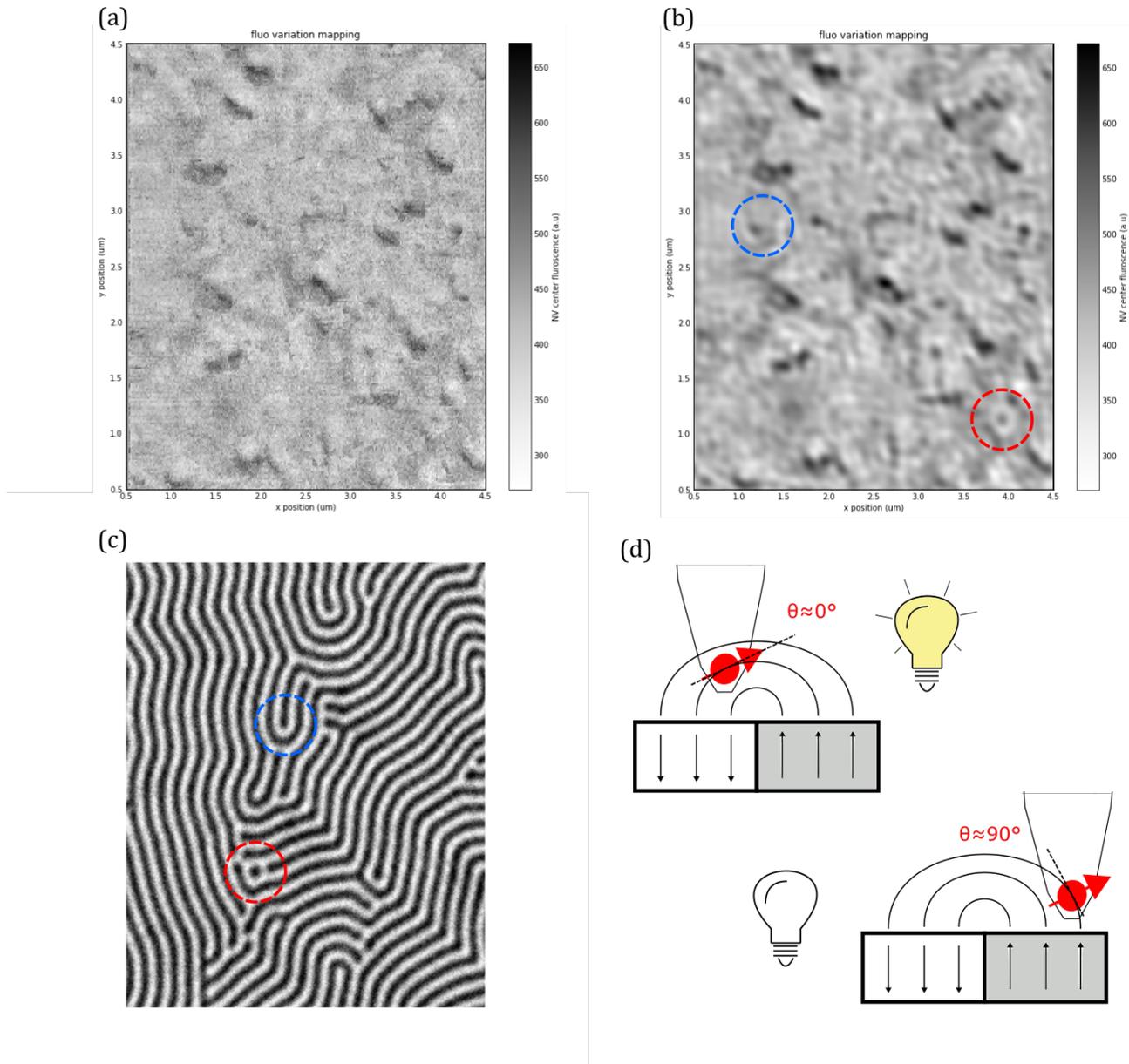
### 2.3.2 Imagerie de film mince de YIG

L'étape suivante a consisté à tester le système sur un échantillon plus complexe et représentatif du dispositif final : un film mince de YIG (Yttrium Iron Garnet) d'une épaisseur de 700nm. Des mesures de microscopie MOKE (Magneto-Optical Kerr Effect) en champ large ont révélé des domaines magnétiques en méandres sur cet échantillon.

La cartographie de fluorescence réalisée sur l'échantillon de YIG a permis, comme pour l'échantillon de disque dur, de détecter des structures magnétiques de manière reproductible. Cependant, l'interprétation directe de ces données s'avère complexe, principalement en raison du bruit significatif du signal mesuré. Ce bruit semble être de faible dimension spatiale, se manifestant typiquement entre des pixels très proches les uns des autres. En appliquant un filtre bidimensionnel pour bloquer les hautes fréquences, on commence à distinguer des structures similaires à celles observées en imagerie MOKE, cf figure 30.

L'orientation du centre NV par rapport à l'échantillon, ainsi que la distance entre la pointe et l'échantillon, influencent grandement l'image obtenue par cette méthode. L'adoption future de pointes AFM-NV avec une orientation hors du plan pourrait probablement réduire le degré de liberté de l'orientation de l'axe NV et faciliter l'interprétation des données.

Finalement, un aspect crucial de cette étude fut de vérifier la robustesse et la reproductibilité des mesures de fluorescence dans le temps, validant ainsi nos protocoles de mesures.



**Figure 30:** (a) Imagerie d'un échantillon de YIG de 730nm d'épaisseur par extinction de fluorescence NV. (b) Image traitée par filtrage des hautes fréquences via FFT2D. (c) Image MOKE du même échantillon à une position différente, montrant les domaines magnétiques. Des points de bifurcations similaires sont identifiés (cercles rouges et bleus). Néanmoins, l'imagerie par extinction de fluorescence présente des limites en termes de bruit et de contraste dans cette utilisation avec cet échantillon. (d) Principe de l'extinction de fluorescence : fluorescence maximale lorsque le champ de fuite est aligné avec l'axe NV et minimale en cas d'orthogonalité.

## 2.4 Imagerie magnétique par mesure RPE

Dans le contexte de mesures sur des champs faibles ou présentant une composante transverse non significative, la méthode privilégiée consiste à effectuer une mesure de résonance paramagnétique électronique optiquement détectée (ODMR) à chaque position de

la pointe par rapport à l'échantillon. Plusieurs approches sont possibles pour ce type de mesure.

La méthode la plus directe consiste à balayer une large plage de fréquences micro-ondes et à réaliser un spectre RPE à large bande avec une haute résolution en fréquence. Cette approche garantit la mesure des deux résonances, fournissant ainsi des informations précises sur l'amplitude et l'angle du champ magnétique  $B$  au niveau du centre NV. Toutefois, cette méthode se révèle extrêmement lente. En effet, un grand nombre de pas de fréquence est nécessaire, et chaque point de fluorescence en fonction de la fréquence est lui-même le résultat d'une moyenne de nombreuses mesures individuelles. Pour des cartographies spatiales de moyenne ou haute résolution, le temps de mesure devient prohibitif.

Prenons un exemple concret : si l'on souhaite réaliser une image de 100x100 pixels, avec une plage de fréquence allant de 2.8 à 3.1 GHz et un temps d'intégration total de 5 secondes par point, le temps de mesure total s'élèverait à 173 jours. Cet exemple illustre clairement que la réalisation de cartographies de champs magnétiques via des spectres RPE complets n'est pas viable en pratique, du fait de la durée excessive des mesures.

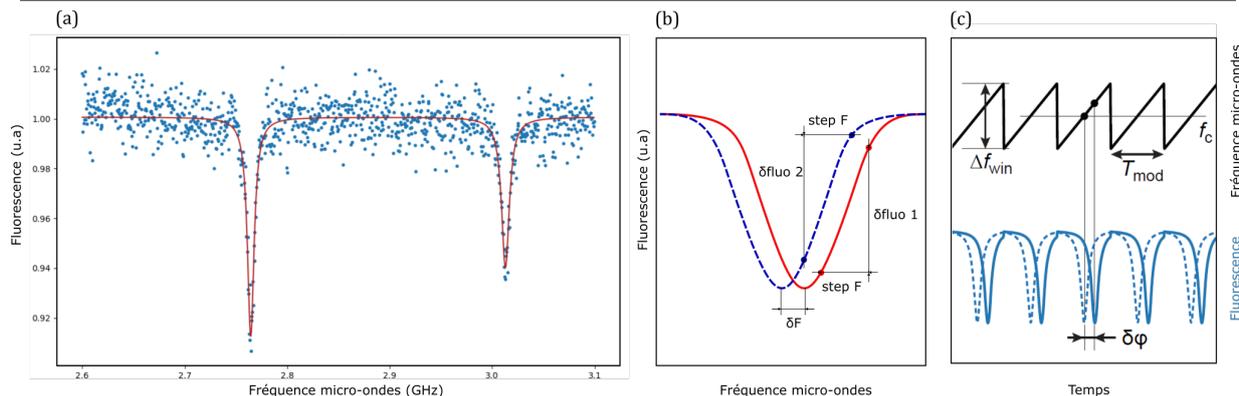
Il est donc impératif de trouver des stratégies visant à réduire le temps de mesure. La première voie d'amélioration repose sur une compréhension approfondie de l'échantillon. Comme il a été exposé dans les sections 1.3.1 et 1.3.2, pour des champs magnétiques inférieurs à 5 mT, une approche linéaire de la réponse du centre NV est jugée cohérente. Il n'est donc plus nécessaire de mesurer les deux fréquences de résonance ; une seule suffit, en supposant la seconde symétrique par rapport à 2.87GHz. Cette spécificité de l'échantillon permet de se limiter à l'analyse d'une seule transition de spin et, de plus, de fixer une borne maximale à la plage de fréquence micro-onde utilisée, correspondant aux 5mT, soit 150MHz. Dans le cas de l'exemple précédent, cela réduit de moitié le temps de cartographie, constituant une avancée significative mais insuffisante.

Pour des mesures en très bas champ, ou à des champs plus élevés où l'approximation linéaire n'est pas adéquate, il existe des méthodes permettant de réduire considérablement le temps de cartographie.

Ces approches convergent vers un objectif commun : minimiser autant que possible l'étendue de la plage de fréquences analysée. En pratique, cela implique de suivre la position d'un ou des deux pics de résonance électronique de spin par rapport à leur position antérieure. On peut alors définir une fenêtre de quelques MHz dont on ajuste la fréquence centrale au fil de la mesure pour suivre le pic par rapport à la fréquence de résonance du pixel précédent. En procédant ainsi, on envisage de réduire par un facteur 7 le nombre de points de mesure en fréquence, et donc le temps de mesure, à nombre de pixels constant.

Cette technique peut être encore affinée en exploitant la forme lorentzienne du pic d'extinction comme fondement d'un algorithme d'ajustement qui utilise un nombre restreint de points de mesure (voir figure 31.b). Ainsi, il est envisageable de limiter le nombre de points à seulement deux. Dans notre fil rouge d'exemple, cela se traduirait par une mesure réduite à une journée.

Une avancée récente du groupe de Christian Degen de l'ETH Zurich et de la société QZabre a radicalement modifié les capacités de mesure en cartographie, [38]. Cette équipe a démontré la possibilité de mesurer le champ sur un pixel en moins de 20ms, voire 5ms selon les dernières annonces commerciales de l'entreprise au moment de la rédaction. Cela se traduit par un taux de 50 à 200 pixels par seconde. Bien que ces valeurs ne soient pas directement comparables à notre exemple en raison de l'optimisation poussée de leur matériel, il est indéniable que cette méthode représente un gain de plusieurs ordres de grandeur, attribuable uniquement à la technique de mesure elle-même.



**Figure 31:** (a) *Mesure directe des fréquences de résonance par enregistrement d'un spectre complet sur une large bande de fréquences micro-ondes. Cette technique nécessite de nombreux points de mesure à chaque fréquence pour moyennner le signal optique, rendant le temps de mesure d'un spectre complet très long. L'usage d'un spectre complet pour cartographier rapidement un champ magnétique de haute résolution est souvent impraticable.* (b) *La méthode de mesure en deux points, ajustée par un modèle Lorentzien, permet de suivre l'évolution de la fréquence de résonance. On mesure la fluorescence à deux fréquences, à mi-hauteur de la résonance, et les variations observées permettent de suivre la résonance en ajustant ces deux fréquences en fonction des mesures précédentes.* (c) *Des avancées récentes ont conduit au développement de méthodes de mesures utilisant des boucles à verrouillage de phase (PLL), améliorant considérablement la vitesse de cartographie et réduisant la durée de mesure. Ces méthodes s'appuient sur la modulation en fréquence de la source micro-onde autour d'une fréquence centrale et sur l'utilisation de la démodulation de la fluorescence pour mesurer le déphasage entre le pic d'extinction de fluorescence et le signal de modulation de fréquence (ici en dents de scie). Figure provenant de [38]*

Le principe repose sur une modulation de la fréquence micro-onde autour d'une fréquence centrale (FM), par un signal en dents de scie. Une boucle d'asservissement de phase analyse alors le déphasage entre le signal de modulation FM et le minimum de fluorescence du centre NV en temps réel, ajustant la fréquence centrale – la porteuse – du générateur micro-ondes pour maintenir un déphasage constant à une valeur prédéfinie. L'utilisation d'une détection synchrone (lock-in amplifier) pour démoduler le signal de fluorescence, couplée à une boucle à verrouillage de phase (PLL), aboutit à un système filtrant la fluorescence exclusivement à la fréquence de modulation, éliminant ainsi les bruits présents sur d'autres fréquences (bruit de shot, dilatation thermique, vibrations, modulation de la pointe, etc.).

Cette méthode se distingue par son élégance et sa puissance, bien que son implémentation soit relativement complexe en termes de matériel et d'algorithmique. Dans notre contexte, il s'agit d'un protocole que nous envisageons d'adopter à l'avenir, en exploitant la capacité de modulation FM de notre générateur et en recourant à un 'boxcar averager' conçu et fabriqué en interne. Ce dernier servira d'interface entre le signal des photodiodes et le lock-in amplifier, notre modèle de lock-in étant inadapté à la mesure directe de ces signaux. À l'heure actuelle, la contrainte principale réside dans l'exigence que l'amplitude de la modulation FM dépasse la largeur des pics du centre NV, une limitation imposée par notre équipement actuel. Pour surmonter cet obstacle, nous pourrions envisager l'usage d'un modulateur/mixer I/Q en conjonction avec l'HDAWG. Dans cette perspective, deux

sorties de signaux arbitraires ont été conservées libres en prévision d'une future mise en œuvre.

## 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exploré la réalisation d'un microscope à centre NV conçu pour une table optique. Ce dispositif nous a permis de nous familiariser avec cette technique de pointe et de développer les protocoles essentiels à l'opérationnalité de ce type de système. Nous avons abordé la conception et l'implémentation des sous-systèmes, non seulement ceux relatifs à l'AFM en tant que tel, mais aussi ceux concernant le circuit optique et instrumental requis. La structure logicielle nécessaire au contrôle des instruments a également été succinctement décrite.

Pour récapituler, notre système se compose d'un microscope AFM à modulation d'amplitude, doté de la capacité à effectuer des balayages de haute résolution sur une fenêtre de  $5 \times 5 \times 5 \mu m^3$  et de l'étendre, si nécessaire, à l'aide de moteurs piézoélectriques pas à pas. Ce système peut employer des pointes AFM-NV montées sur tuning fork pour les mesures. Il est conçu pour localiser avec précision le centre NV sur la pointe et verrouiller cette position relative selon les besoins, pour exécuter des protocoles impulsionsnels sur le centre NV et/ou effectuer des cartographies magnétiques d'échantillons via le centre NV.

Si requis, un champ magnétique externe, dont l'amplitude et l'orientation sont contrôlables, peut être appliqué à l'échantillon et au NV à l'aide d'un aimant permanent monté sur des moteurs piézoélectriques pas à pas. Des tests préliminaires de cartographies de textures magnétiques, utilisant la méthode d'extinction de fluorescence, ont été entamés pour valider au moins la capacité du système à produire des mesures reproductibles. Ces essais se sont appuyés sur des échantillons générant des champs de fuite importants, réduisant substantiellement la fluorescence du NV lors d'un faible alignement entre le champ et l'axe NV. Les échantillons testés comprennent un segment de disque dur et un film mince de YIG.

Néanmoins, certaines fonctionnalités clés, cruciales pour les futures études sur les YIG, restent à être testées et, pour certaines, finalisées avant que nous puissions considérer cet instrument comme pleinement opérationnel. Il s'agit principalement du développement de protocoles logiciels. Exception faite pour la section consacrée au suivi et au verrouillage de la fréquence de résonance par boucle à verrouillage de phase (PLL), qui, malgré d'importants progrès — tels qu'un boxcar averager fonctionnel développé en interne — nécessite une poursuite des développements, notamment dans le domaine radiofréquentiel.

Dans le chapitre suivant, nous aborderons une problématique inédite dans le cadre de cette expérience : la contrainte sévère d'encombrement des systèmes. Nous relèverons le défi instrumental consistant à intégrer une optique de focalisation de haute performance dans l'espace très limité du microscope NV sous champ ultra-stable, qui sera présenté en détail dans la dernière partie de ce manuscrit.



# DÉVELOPPEMENT D'UNE OPTIQUE DE FOCALISATION CATOPTRIQUE

---

## 3.1 Introduction et problématique

L'introduction de systèmes optiques novateurs est essentielle pour faire progresser les techniques de microscopie de précision, notamment dans le domaine émergent de la microscopie à centre NV, mais aussi pour la microscopie et la spectroscopie RAMAN et pour des domaines plus transverses tel que les mesures optiques dans un vide poussé ou à des températures cryogéniques. Les approches optiques traditionnelles se heurtent à des limites significatives en termes d'achromatisme, d'ouverture numérique (NA), de compacité et de distance de travail. Dans ce contexte, nous présentons notre contribution : le développement des Lentilles Achromatiques par Réflexion Totale Interne sur Génératrices ConiQUEs, abrégées sous l'acronyme LARTIGUE.

Pour mettre en perspective cette innovation, nous avons d'abord examiné les méthodes conventionnelles de focalisation utilisées en optique visible, soulignant leurs particularités et, souvent, leurs limitations pour des applications en microscopie à centre NV. Nous avons mis l'accent sur la nécessité d'achromatisme, de hautes performances de focalisation et d'une grande ouverture numérique, tout en respectant les contraintes de compacité pour l'intégration dans un microscope à centre NV fonctionnant sous un champ magnétique ultra-stable.

Les lentilles LARTIGUE sont conçues autour d'un élément optique unique comprenant deux paires de surfaces réfléchissantes conjuguées, éliminant naturellement les aberrations chromatiques et sphériques tout en garantissant une transmission lumineuse supérieure à 95% à travers une grande NA. Cette conception innovante est adaptée aux environnements exigeants, comme l'espace réduit entre les pôles d'un électroaimant produisant un champ magnétique puissant, et est idéale pour observer la photoluminescence d'un défaut NV isolé dans un diamant.

Les progrès dans l'usinage diamant ont permis la création de miroirs axi-symétriques complexes avec une précision nanométrique, essentiels pour les performances optiques de nos lentilles. Les lentilles LARTIGUE offrent ainsi une solution performante et élégante aux défis de la microscopie haute résolution, combinant achromatisme, compacité, haute NA et flexibilité de la distance de travail, promettant des applications microscopiques plus précises et polyvalentes.

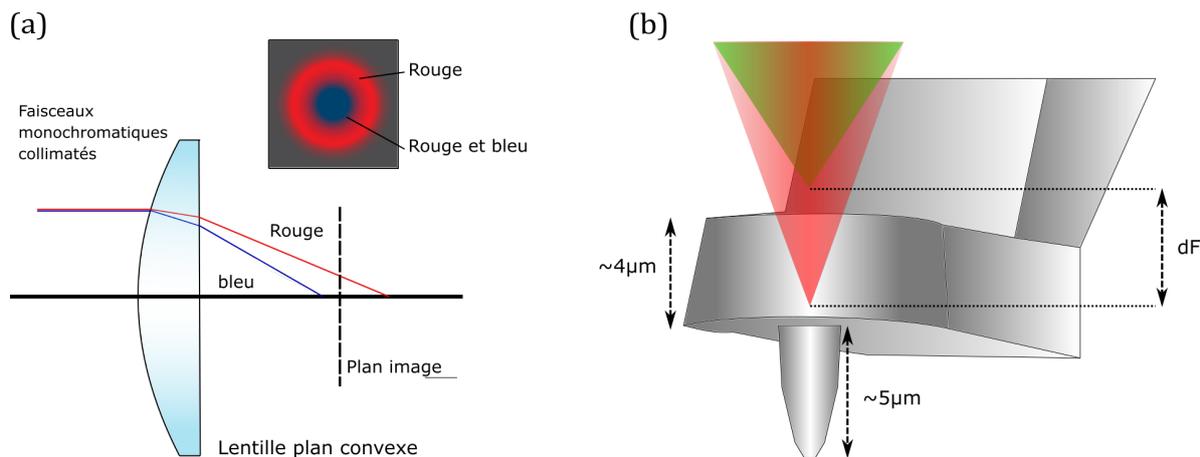
Dans ce chapitre, nous détaillons le développement de ces lentilles. Nous débutons par une discussion sur les contraintes expérimentales qui ont motivé la recherche de solutions optiques avancées, suivie d'un aperçu de l'état de l'art des systèmes de focalisation existants. Nous plongeons ensuite dans la conception de LARTIGUE, explorant les principes fondamentaux de sa conception, sa mise en œuvre matérielle et les défis de faisabilité, et concluons avec les simulations ayant permis d'optimiser la conception.

Le développement d'un microscope à centre NV opérant sous un champ magnétique ultra-stable a imposé des contraintes de compacité significatives pour l'intégration de

l'optique. L'espace alloué aux composants optiques dédiés à la microscopie NV est très restreint, de l'ordre de  $30 \times 30 \times 30 \text{ cm}^3$ , ce qui est crucial pour les avancées futures liées à cette lentille. Les performances optiques de l'objectif, en particulier sa capacité à maintenir une distance focale constante indépendamment de la longueur d'onde, sont des critères essentiels pour son application en microscopie NV. Les défis liés à l'achromatisme de l'objectif sont particulièrement importants dans l'étude des centres NV, où la capacité à focaliser efficacement des longueurs d'onde variables est cruciale, comme détaillé dans la section 4.2.3.

Les autres contraintes pesant sur l'objectif sont centrées sur les performances optiques requises pour son utilisation en microscopie NV. Le premier critère essentiel est la capacité du système optique à maintenir une distance focale aussi indépendante que possible de la longueur d'onde du faisceau utilisé. Cette propriété est communément appelée l'achromatisme de l'objectif.

Dans le contexte de l'étude des centres NV, la longueur d'onde monochromatique du faisceau laser d'excitation se situe généralement entre 510 et 570 nm. Toutefois, les longueurs d'onde de fluorescence émises par le centre NV se trouvent dans un spectre continu allant de 600 à 800 nm environ. Étant donné que le centre NV est un défaut ponctuel situé dans une pointe AFM de dimensions micrométriques, notre système optique doit être capable de focaliser ces différentes longueurs d'onde en un même point, comme illustré figure 32. En d'autres termes, l'objectif doit être le plus achromatique possible.



**Figure 32:** (a) Schéma illustrant l'effet d'un système de focalisation chromatique sur la position du point focal en fonction de la longueur d'onde. Dans ce type de système, il est impossible d'aligner la focalisation de différentes longueurs d'ondes en un même point, même avec des faisceaux parfaitement collimatés. Sur le plan image de ce système optique, les différentes longueurs d'ondes apparaissent séparées. (b) Les dimensions des pointes AFM-NV imposent une exigence stricte sur le chromatisme des optiques utilisées pour l'excitation et la détection de la fluorescence du centre NV.

Le second critère de performance optique concerne l'ouverture numérique de l'objectif (N.A., pour Numerical Aperture). Il s'agit de l'angle sous lequel le système optique collecte la lumière. Plus cet angle est grand, plus le système peut capter les photons émis par la fluorescence du centre NV, améliorant ainsi le rapport signal-sur-bruit. Il est cependant apparu récemment des solutions permettant de ne pas recourir à des ouvertures numériques importantes pour des pointes AFM-NV possédant des géométries permettant de maximiser la fluorescence dans l'axe optique, [39]. De manière globale, les pointes AFM-NV sont conçues pour agir comme des guides optiques, canalisant une quantité sig-

nificative de la fluorescence émise par le centre NV vers l'axe de l'objectif. Naturellement, le centre NV émet de la lumière dans toutes les directions en tant que dipôle. Toutefois, au sein d'une pointe AFM-NV, la configuration géométrique spécifique et l'indice de réfraction élevé du diamant favorisent la réflexion interne totale. Ce phénomène permet de guider une partie de la fluorescence, qui sans cela serait dispersée, vers l'axe de l'objectif, optimisant ainsi la collecte du signal.

L'ouverture numérique est directement liée à la capacité de l'objectif à atteindre la limite de diffraction, c'est-à-dire que les performances de focalisation du système sont alors restreintes par les propriétés physiques de la lumière elle-même, et non par la conception optique du système. Cette caractéristique est cruciale pour déterminer la largeur du faisceau au point focal de l'objectif et, par conséquent, son pouvoir de résolution.

Le système doit également être capable de réaliser de l'imagerie directe en lumière blanche. Bien que ce critère ne soit pas essentiel pour la microscopie NV, il est très pratique pour imager directement la pointe NV et ainsi faciliter son positionnement lors des réglages.

Une autre contrainte concerne la distance de travail de l'objectif (W.D., pour Working Distance). Cette mesure indique la distance entre le système optique et le point focal. Dans les systèmes optiques simples, cette distance est équivalente à la distance focale. Cependant, dans le cas de systèmes optiques plus complexes, la W.D. peut différer de la distance focale équivalente du système. Pour permettre l'introduction de la pointe AFM-NV entre le système optique et l'échantillon, cette distance de travail doit être d'au moins 1 mm.

## 3.2 Techniques de focalisation et état de l'art

Il existe quatre grandes familles de systèmes de focalisation :

- Les systèmes dioptriques, qui reposent uniquement sur des lentilles transparentes et qui utilisent la réfraction aux interfaces pour dévier et focaliser la lumière.
- Les systèmes catadioptriques, qui combinent des dioptries et des éléments réfléchissants pour réaliser la focalisation.
- Les systèmes catoptriques, qui se basent exclusivement sur des surfaces réfléchissantes pour la focalisation.
- Les métalentilles / métasurfaces, qui sont des optiques plates composées de structures sub-longueur d'onde qui permettent de manipuler la lumière afin de focaliser le faisceau.

Dans cette section, nous examinerons les différentes solutions de focalisation disponibles dans l'état de l'art, hors-mis les métasurfaces. Nous discuterons de leurs avantages et inconvénients dans le contexte de notre projet. Nous nous intéresserons ici à des objectifs de microscopie conjugués à l'infini. Cela signifie qu'un faisceau parallèle en entrée de la pupille de l'objectif va être focalisé en un point au niveau du point focal de l'objectif.

### 3.2.1 Optiques dioptriques

Dans le domaine de la microscopie, la majorité des objectifs sont construits autour d'un ensemble de lentilles en verre conçues pour focaliser un faisceau lumineux collimaté. Cependant, le phénomène de réfraction, qui est essentiel à ces technologies de focalisation,

présente un défaut majeur : il est intrinsèquement chromatique. Selon la loi de Snell-Descartes, les angles de réfraction varient en fonction de la valeur de l'indice optique du matériau à la longueur d'onde de la lumière, ce qui entraîne une variation de la distance focale de l'objectif selon la couleur de la lumière utilisée. Cette dépendance chromatique est clairement illustrée dans le schéma de la figure 32.

Par ailleurs, des performances diverses sont observées pour des lentilles ayant la même distance focale mais des définitions différentes de leurs surfaces d'interface, ce qui nous amène au concept d'aberrations géométriques. Ces aberrations sont des distorsions de l'image qui résultent uniquement de la conception de la lentille. Par exemple, considérons une lentille éclairée par un faisceau laser monochromatique et cohérent, aligné avec l'axe optique de la lentille. Pour une "lentille idéale", la focalisation de ce faisceau serait un point précis sur le plan de l'image. La taille de ce point est alors limitée par les propriétés ondulatoires de la lumière, c'est-à-dire qu'on atteint la limite de diffraction où la taille du point focal ne dépend que de la longueur d'onde du laser et de l'ouverture numérique (NA) du système optique, comme décrit par l'équation suivante :

$$d = \frac{\lambda}{2n \sin \theta} = \frac{\lambda}{2NA} \quad (3.1)$$

où  $d$  est la résolution maximale possible,  $n$  est l'indice optique du milieu, ici de l'air avec  $n = 1$ ,  $\lambda$  est la longueur d'onde et  $\theta$  ou  $NA$  est l'angle d'ouverture ou l'ouverture numérique du système.

Historiquement, les lentilles réfractives ont été conçues avec des surfaces sphériques, qui ne sont que des approximations des systèmes focaux parfaits et ne sont pas optimales pour une focalisation précise. Pour surmonter les aberrations géométriques sphériques, des améliorations dans la définition des surfaces ont été envisagées, conduisant à la conception et la réalisation de lentilles asphériques. Ces lentilles présentent un rayon de courbure qui varie radialement depuis leur centre, et la forme de ces surfaces asphériques  $Z(s)$  est donnée par l'équation suivante :

$$Z(s) = \frac{Cs^2}{1 + \sqrt{1 - (1+k)C^2s^2}} + A_4s^4 + A_6s^6 + A_8s^8 + \dots \quad (3.2)$$

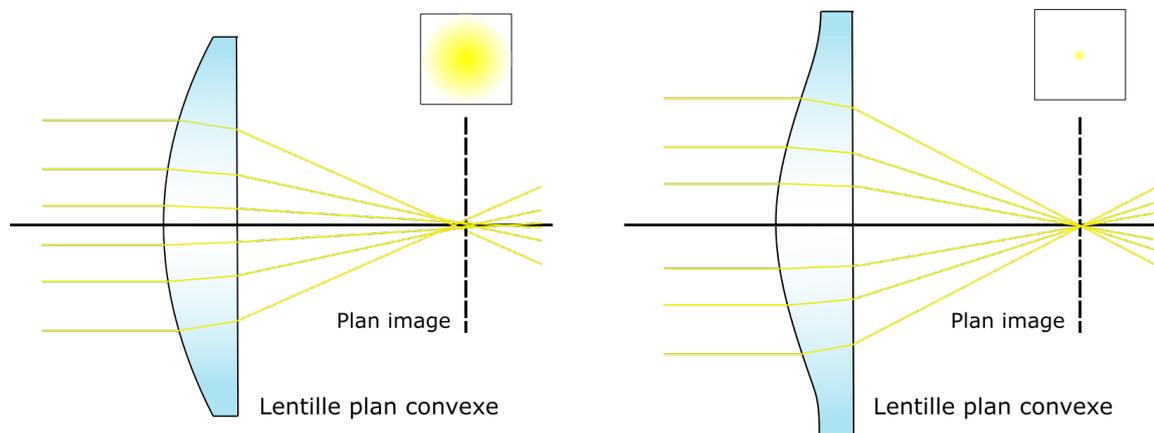
Dans cette équation :

- $Z$  est la déclivité/sagittal de la surface parallèle à l'axe optique,
- $s$  est la distance radiale depuis l'axe optique,
- $C$  est la courbure, inverse du rayon,
- $k$  est la constante conique,
- $A_4, A_6, A_8, \dots$  sont les coefficients des termes asphériques d'ordre 4<sup>ième</sup>, 6<sup>ième</sup>, 8<sup>ième</sup>, ...

Sans ces coefficients supplémentaires, la surface devient purement conique, et la nature de la surface dépend alors de la valeur de  $k$  : pour  $k = 0$  la surface est sphérique, pour  $k > -1$  elle est elliptique, pour  $k = -1$  parabolique et pour  $k < -1$  hyperbolique. Les termes polynomiaux de degré pair permettent de faire correspondre la lentille aux performances désirées.

L'avantage des lentilles asphériques est leur capacité à corriger les aberrations sphériques et, dans certains cas, d'atteindre la limite de diffraction, cf figure 33. Aujourd'hui, ces lentilles sont de plus en plus répandues grâce à l'évolution des techniques d'usinage numérique qui permettent de fabriquer de manière fiable et précise ces surfaces complexes.

Les optiques de pointe dédiées à la microscopie intègrent désormais ce type de lentilles asphériques pour améliorer la qualité et la précision de l'imagerie.

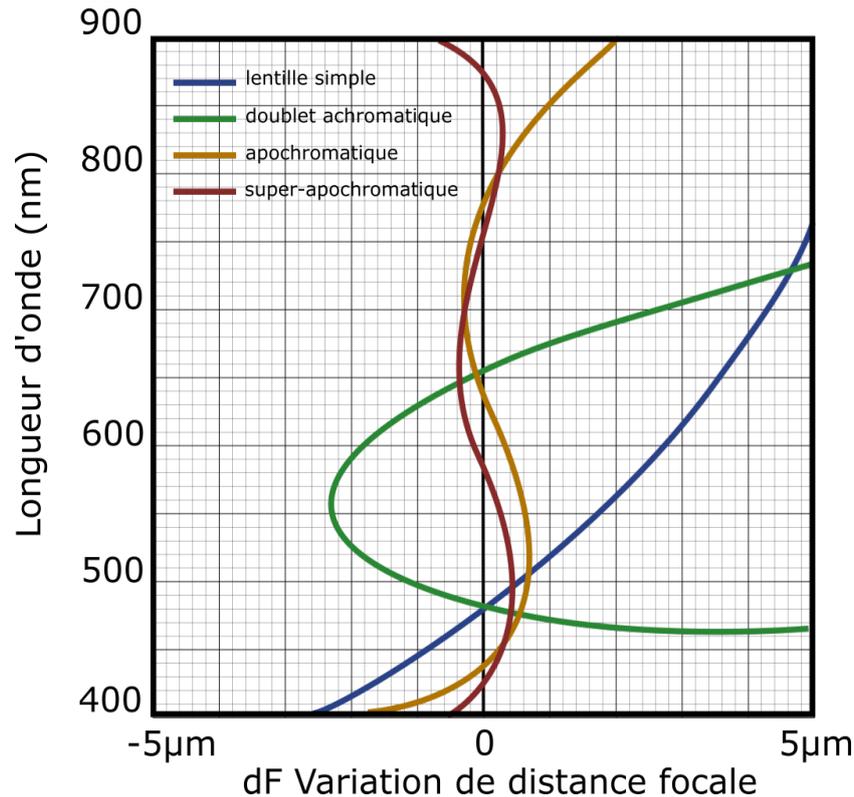


**Figure 33:** Comparaison entre lentille plan-convexe standard et lentille asphérique : Lentille plan-convexe standard, cette lentille est caractérisée par une surface convexe sphérique, ce qui facilite grandement sa fabrication. Toutefois, cette simplicité de conception entraîne des limitations en termes de performances de focalisation, principalement dues aux aberrations géométriques. À l'inverse, les lentilles asphériques sont basées sur des descriptions plus complexes de leurs surfaces convexes. Cette complexité permet de surmonter les aberrations géométriques typiques des lentilles plan-convexes, améliorant ainsi les performances de focalisation. Cependant, cette amélioration se traduit par une augmentation de la complexité de fabrication et du coût de ces lentilles.

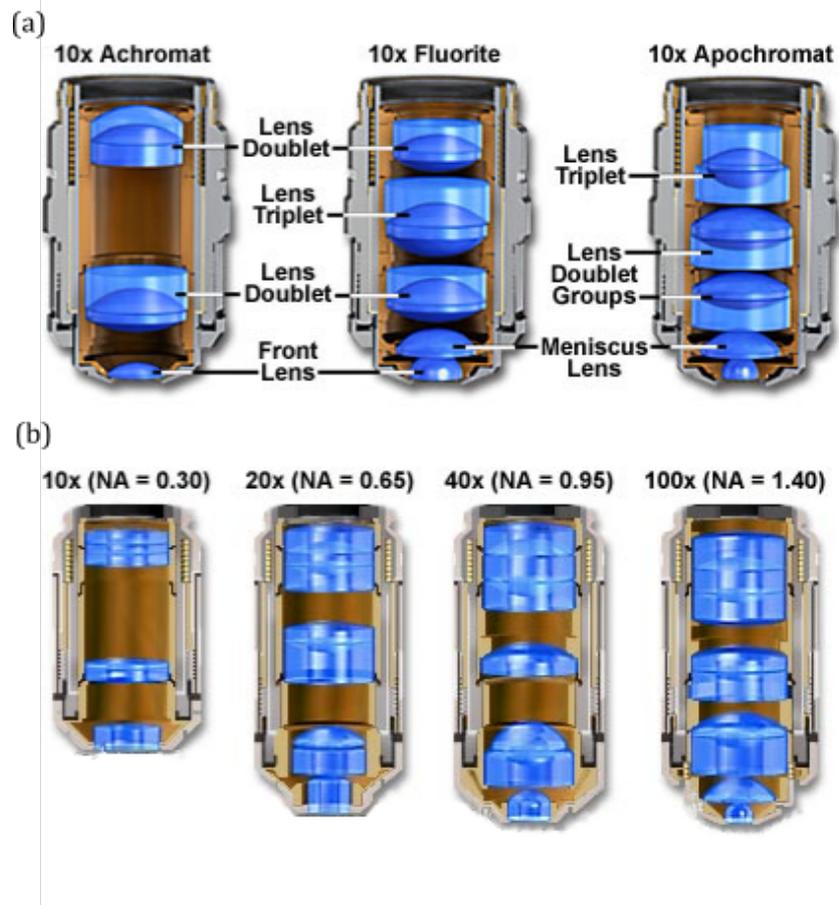
Pour pallier les limites imposées par le chromatisme, l'industrie optique s'est engagée depuis des décennies dans une quête d'innovation, aboutissant au développement d'objectifs de conception complexe. Ces systèmes optiques se catégorisent en achromatiques, apochromatiques ou super-apochromatiques, selon leur degré d'atténuation des effets chromatiques, comme illustré dans la figure 34. Leur principe repose sur l'association de lentilles faites de matériaux aux indices de réfraction variés, afin de corriger le chromatisme sur une bande de longueurs d'ondes définie. Les améliorations successives de cette approche révèlent le nombre de longueurs d'onde pour lesquelles elles conservent une distance focale constante. Il convient cependant de remarquer qu'un système dioptrique entièrement exempt de chromatisme reste théorique.

Malgré cela, de tels objectifs trouvent leur place en microscopie NV, représentant un compromis entre performance et disponibilité commerciale. Toutefois, les efforts pour atténuer le chromatisme se traduisent par une augmentation de la taille des objectifs, et en particulier de leur longueur, qui s'étend souvent à une dizaine de centimètres, en raison du grand nombre d'éléments optiques nécessaires, comme illustré figure 35. Cette caractéristique les rend inadaptés à notre dispositif optique en raison de contraintes d'espace.

À titre d'exemple, un objectif courant en microscopie NV, le Mitutoyo 50x NIR HR, mesure environ 80mm de long et offre une distance de travail de 17mm. L'encombrement total avoisine donc 100mm, ce qui est prohibant pour l'intégration dans notre système aux dimensions restreintes.



**Figure 34:** L'illustration ci-dessus met en perspective le comportement attendu en termes de chromaticité des différents types de systèmes de focalisation réfractifs d'un grandissement X50. En bleu : comportement d'une lentille simple, où le plan focal se croise en une seule position, dépendante de la longueur d'onde. En vert : comportement d'un doublet achromatique, où le plan focal se croise pour deux longueurs d'ondes distinctes, minimisant ainsi la dispersion chromatique. En orange : comportement d'un système apochromatique, où le plan focal se croise en trois points différents, offrant une correction chromatique plus avancée. En rouge : comportement d'un système superachromatique (ou super-apochromatique), où le plan focal se croise pour trois longueurs d'ondes ou plus, offrant la meilleure correction chromatique possible avec des technologies réfractives. Ces différents comportements illustrent les limites des systèmes réfractifs en termes de correction de la chromaticité.

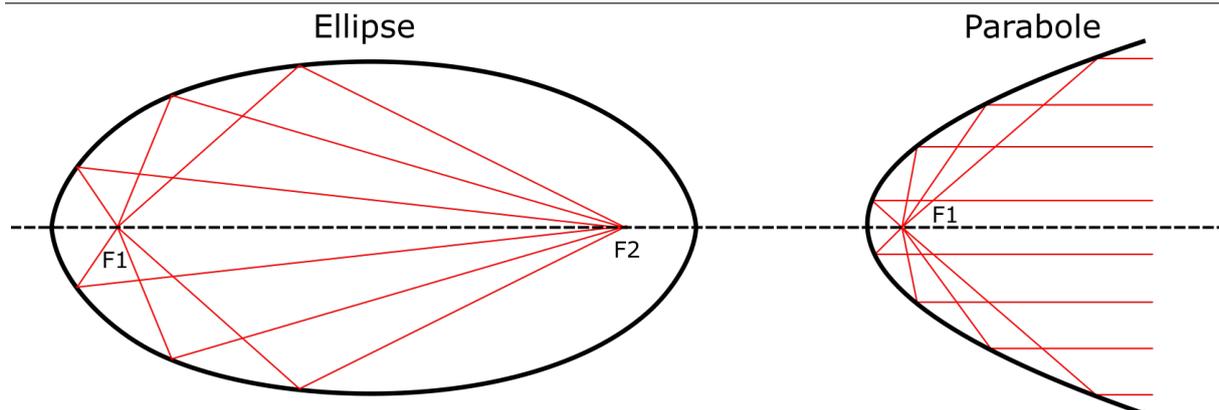


**Figure 35:** (a) Schémas de coupes de différents types d'objectifs de microscopie dioptrique. Sont présentés de la gauche vers la droite l'évolution de systèmes en fonction de l'augmentation de leur achromatisme. Il est à noter que les objectifs apochromatiques, offrant des performances supérieures en termes d'achromatisme, nécessitent un plus grand nombre de lentilles et, par conséquent, plus d'espace, comparativement aux objectifs achromatiques plus simples. (b) Comparaison de la complexité en terme de nombre de lentilles pour différents objectifs apochromat de grandissements croissants. Les objectifs proposant le plus fort grandissement présentent alors la plus grande longueur. Ces deux effets sur la taille des objectifs sont cumulatifs. Figures issues de [40] et de <https://micro.magnet.fsu.edu/>.

### 3.2.2 Optiques Catoptriques

Il existe une branche de l'optique qui par nature ne souffre pas de chromatisation : celle des optiques catoptriques, fondées sur le phénomène de réflexion spéculaire.

Tout comme les lentilles réfractives, les miroirs ont été historiquement définis par des surfaces sphériques, héritant ainsi des mêmes aberrations que celles attribuées aux surfaces sphériques précédemment évoquées. L'astronomie a été le champ d'application précurseur pour l'utilisation de miroirs dans la focalisation des faisceaux par réflexion. Les astronomes ont rapidement conçu des surfaces plus élaborées que de simples sphères pour atteindre des configurations focales optimales. Ces systèmes optiques reposent sur des surfaces réfléchissantes, dont la géométrie est décrite par des fonctions mathématiques déterminant des points focaux précis.

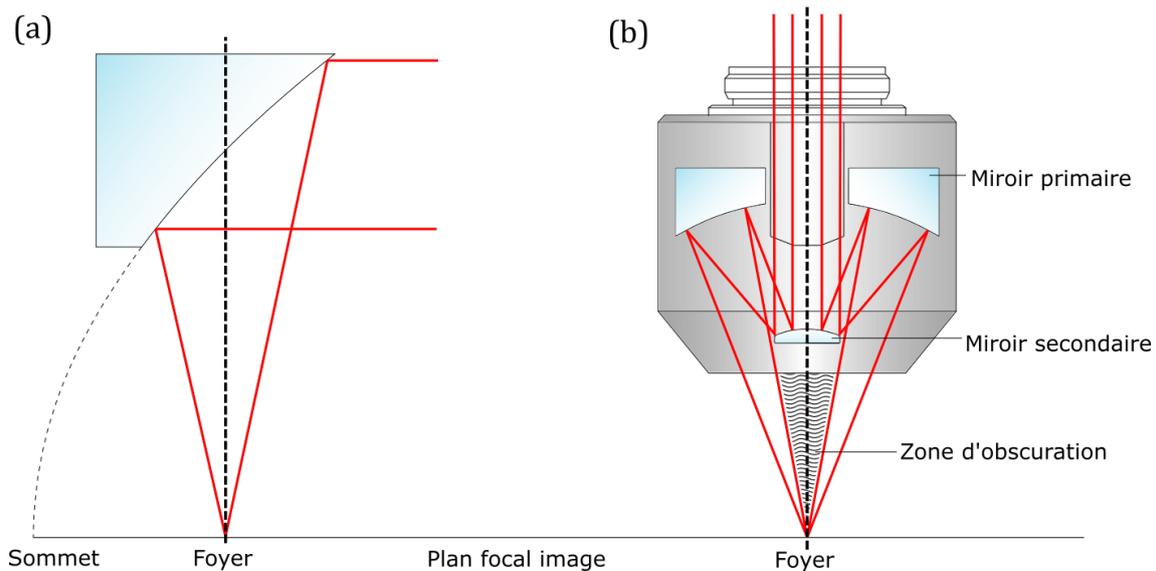


**Figure 36:** Représentation des définitions de surfaces asphériques focales : à gauche, l'ellipse, qui possède deux points focaux alignés le long de son axe principal, permet une focalisation en ces deux points. À droite, la parabole, avec un unique point focal, est utilisée pour collimater des faisceaux parallèlement à son axe, les dirigeant vers l'infini.

Le dispositif le plus élémentaire pour focaliser un faisceau collimaté venant de l'infini est la parabole, cf figure 36. Pour réaliser la focalisation en un point d'un faisceau collimaté à l'infini tout en évitant le problème d'obscuration, la parabole est couramment employée de manière décentrée par rapport à l'axe. Ce principe est utilisé pour collimater un faisceau en sortie de fibre optique et inversement. Cependant, l'alignement représente un défi majeur dans ce type de configuration en raison de l'absence de symétrie axiale. Cette asymétrie se révèle souvent incompatible avec des systèmes requérant une haute précision. En effet, la moindre déviation du faisceau par rapport à l'axe de la parabole engendre une focalisation imparfaite, qui ne se situe plus à la limite de la diffraction. Il en résulte une aberration géométrique connue sous le nom de coma, ainsi nommée en raison de sa ressemblance avec la queue d'une comète, telle qu'elle était perçue par les astronomes aux premières heures de l'utilisation des miroirs paraboliques.

Pour surmonter le problème inhérent à l'absence de symétrie axiale, les opticiens ont mis au point diverses configurations pour la microscopie, souvent inspirées des techniques développées pour l'optique astronomique, comme le télescope de Newton. Le montage catoptrique typique en microscopie est celui de Schwarzschild, cf figure 37. Il s'appuie sur un duo de miroirs : un miroir primaire concave elliptique et un miroir secondaire convexe parabolique. L'astuce consiste à aligner l'un des foyers de l'ellipse avec celui de la parabole, ce qui permet une focalisation exempte de chromatisme. Ce concept est largement reconnu dans le domaine des systèmes optiques et permet de pallier la chromaticité des dispositifs réfractifs. De plus, cette configuration présente l'avantage d'être compacte, se limitant à deux surfaces réfléchissantes.

Néanmoins, une contrainte majeure de ces objectifs est l'obscuration partielle du champ de vision causée par le miroir secondaire. Par nature, ce montage induit une zone d'ombre au centre du champ optique. Dans la microscopie classique, cette particularité ne pose généralement pas de souci, mais elle devient problématique en spectroscopie NV. Les pointes AFM-NV, de par leur conception, affichent un profil d'émission de fluorescence qui n'est pas uniforme ; l'intensité lumineuse augmente à mesure qu'on se rapproche de la normale par rapport à la surface, [41]. Cela est lié à la conception de ces pointes, qui fonctionnent comme des guides d'ondes pour la fluorescence et sont optimisés pour une utilisation avec des objectifs de microscopie classiques, dont l'efficacité est maximale près de leur axe optique.



**Figure 37:** (a) Utilisation d'une parabole hors-axe pour la focalisation : Cette illustration en coupe montre l'application d'une parabole hors-axe dans un système de focalisation. L'axe optique vertical, représenté en pointillés, passe par le foyer de la parabole mais ne coïncide pas avec l'axe intrinsèque de la parabole, qui dans le cas d'une parabole renvoyant à  $90^\circ$ , est confondu avec le plan focal. Cette configuration ne présente donc pas de symétrie de révolution dans la section hors-axe utilisée. (b) Vue en coupe d'un objectif réflectif de Schwarzschild : Cet objectif est composé d'un miroir primaire percé, généralement elliptique, et d'un miroir secondaire, généralement parabolique, maintenu en position afin de faire coïncider les points focaux respectifs. L'axe optique vertical, en pointillés, de l'objectif coïncide avec l'axe de symétrie de révolution, simplifiant ainsi le positionnement en limitant les degrés de liberté. On note que le miroir secondaire crée une zone d'obscurité au milieu du champ de vision de l'objectif.

Par conséquent, l'utilisation d'objectifs de Schwarzschild n'est pas compatible avec notre application. En effet, nous perdrons une fraction significative du signal de fluorescence, qui est déjà très faible à l'origine. Il n'est donc pas envisageable de recourir à cette conception dans ce contexte.

### 3.3 Conception reflexicones

Nous avons établi dans la section précédente que l'utilisation d'optiques basées sur des phénomènes de réfraction est inenvisageable dans notre cas, en raison de leur chromaticité et de leur encombrement. De même, les systèmes catoptriques existants ne sont pas adaptés en raison de diverses problématiques de conception, notamment l'obscurité du champ de vision.

Cependant, il est crucial de souligner que les systèmes catoptriques éliminent le problème du chromatisme et que certaines conceptions offrent une compacité compatible avec les contraintes de notre microscope.

Partant de ces principes de conception, il est pertinent de se demander s'il est possible de créer un objectif de focalisation catoptrique qui soit à la fois achromatique, compacte, sans zone d'obscurité et doté de bonnes performances optiques. Le but de notre développement, qui sera analysé dans cette section, est d'atteindre l'achromaticité

en utilisant des réflexions, tout en conservant une conception basée sur une symétrie de révolution, compact et en éliminant les problèmes d'obscuration du champ de vision.

### 3.3.1 Principes fondamentaux

La conception de notre système optique repose sur une association originale d'une ellipse et d'une parabole partageant un point focal commun, comme illustré figure 38. Cette configuration unique permet la collimation d'un faisceau émergent vers l'infini ou, inversement, la focalisation d'un faisceau venant de l'infini.

Cependant, à la différence d'un objectif de Schwarzschild, les axes de ces surfaces ne sont pas alignés avec l'axe optique du système. Ce choix de conception vise à éviter le phénomène d'obscuration. Pour réaligner le faisceau de sortie avec l'axe optique de l'objectif, deux surfaces supplémentaires sont intégrées. Ces surfaces, qui seront détaillées ultérieurement dans la section 3.3.3, sont pour l'instant considérées comme des plans servant uniquement à diriger le faisceau.

Cette combinaison de quatre surfaces réfléchissantes crée un système de focalisation collimaté vers l'infini, qui est à la fois achromatique et sans obstruction. Cette conception, structurée autour d'un axe de révolution et basé sur des surfaces définies par des équations coniques, est qualifié d'axiconique.

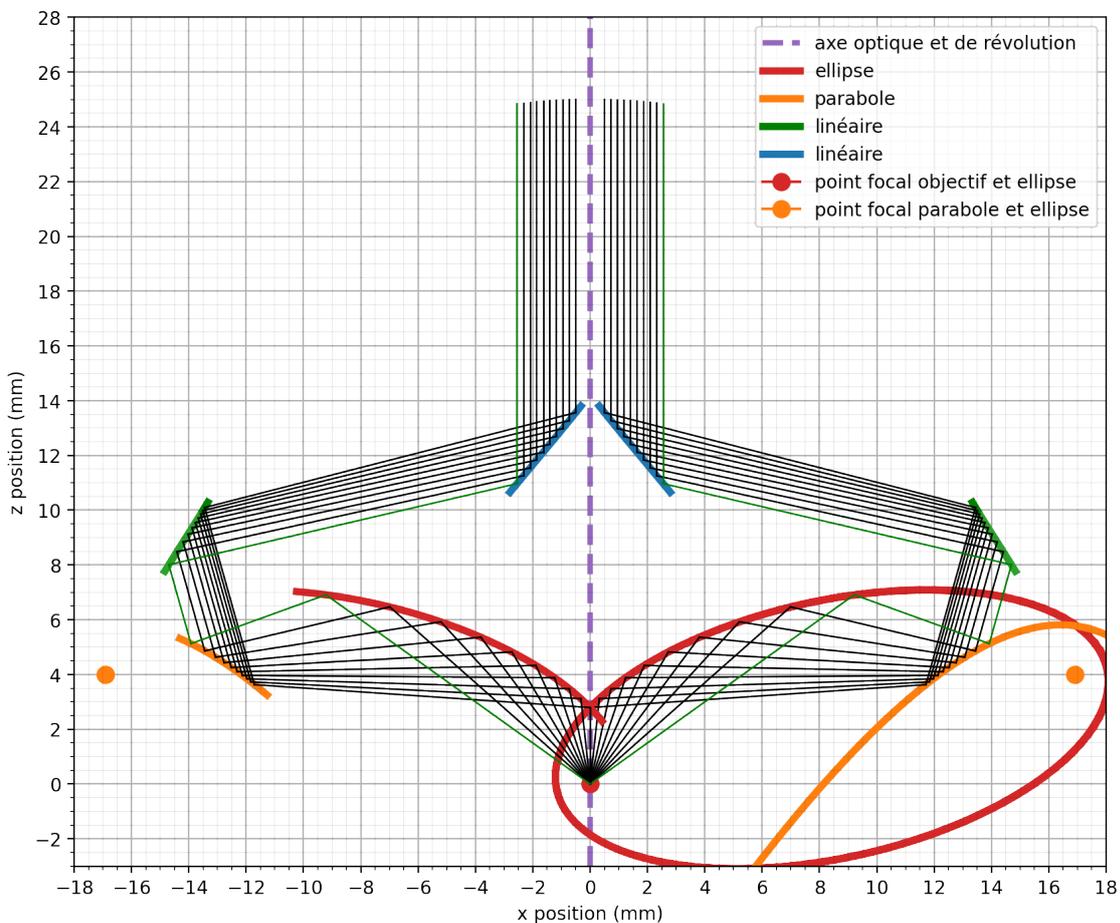
Pour développer ce concept, nous avons utilisé un programme Python développé en interne, capable de simuler numériquement le parcours optique des rayons lumineux. Ce logiciel nous permet de définir les surfaces réfléchissantes, les paramètres du point d'émission, et d'effectuer des simulations en deux dimensions dans un plan passant par l'axe optique. Les limites de cette méthode résident dans l'absence de prise en compte de la nature ondulatoire de la lumière, ne nous permettant pas d'analyser la forme du front d'onde du système. De plus, la longueur d'onde de la lumière n'est pas considérée, bien que cela soit moins critique étant donné la nature réfléchissante du système. Enfin, cette approche n'aborde pas les aspects tridimensionnels de la réalité, ce qui peut être limitant lorsque la source n'est pas exactement au point focal.

Néanmoins, ce programme de simulation s'est révélé extrêmement utile. Il nous a permis de tester rapidement des idées et des concepts, et de déterminer les paramètres des courbes les plus adaptés à nos exigences.

Après plusieurs itérations, les définitions mathématiques des surfaces ont pu répondre aux exigences initiales :

- Achromaticité au point focal.
- Compacité, avec une taille confinée dans un volume de  $30 \times 30 \times 30 \text{ mm}^3$ .
- Large ouverture numérique, supérieure à 0.7.

Il est intéressant de noter que, au cours de notre travail sur cette conception, nous avons pris connaissance des recherches menées par Georg Nadorff et Frank DeWitt [42], qui se sont penchés sur la conception de lentilles basées sur un design similaire, avec une approche analogue à celle des lentilles asphériques. Ces travaux s'avèrent particulièrement pertinents car ils proposent une méthode de conception s'inscrivant dans les techniques établies de l'industrie optique différente de la nôtre.



**Figure 38:** Cette figure illustre les surfaces réfléchissantes utilisées dans un système optique. L'axe de révolution du système est représenté par la ligne verticale violette. Dans la partie droite du schéma, l'ellipse et la parabole sont représentées dans leur intégralité. À gauche, seules les sections responsables des réflexions sont affichées. Le point focal de l'objectif, marqué par un point rouge à l'origine, coïncide avec le premier point focal de l'ellipse (également en rouge). Un rayon lumineux émergeant de ce point est réfléchi par la surface elliptique (rouge) et dirigé vers son second point focal. Ce second point focal, indiqué par un point orange, est aligné avec le point focal de la parabole. Cependant, avant d'atteindre ce point, le rayon est réfléchi par la parabole (orange) et ainsi collimaté à l'infini. Ce faisceau, une fois mis à l'infini, est ensuite réfléchi par deux autres surfaces (vertes et bleues), globalement planes, pour être orienté dans l'axe optique de l'objectif.

Cependant, il est regrettable de constater que, malgré leur potentiel théorique et l'affiliation des auteurs à l'entreprise Melles Griot à l'époque de la publication, ces recherches n'ont pas débouché sur la création de prototypes concrets. Cette situation souligne parfois le fossé existant entre la théorie et la pratique dans le domaine de la conception optique avancée, et met en évidence les défis qui peuvent subsister lors de la transition d'un concept théorique vers sa réalisation pratique.

### 3.3.2 Faisabilité et réalisation matérielle

Pour réaliser le système de quatre surfaces réfléchissantes envisagé, une étape cruciale de prototypage et de tests est nécessaire.

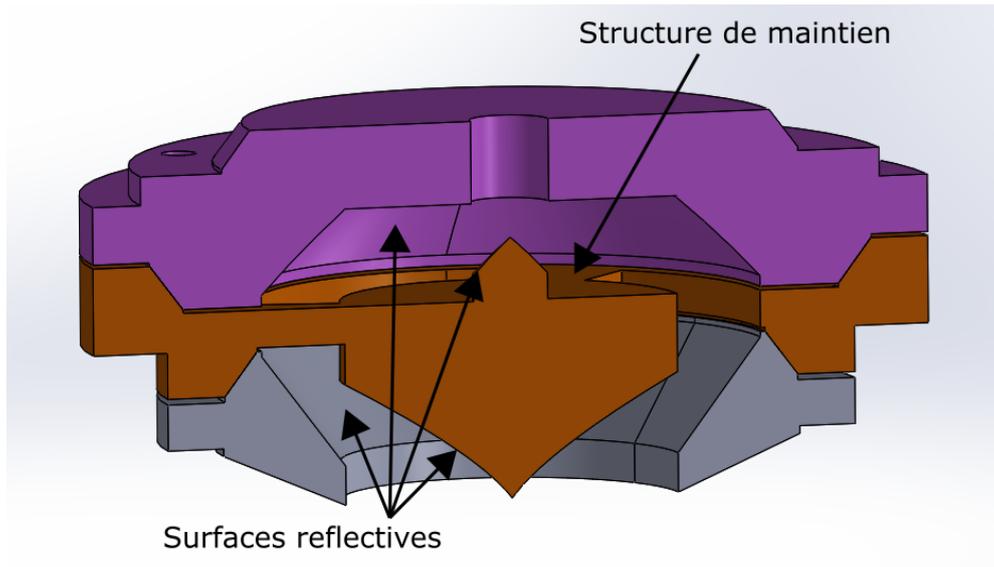
Grâce aux progrès réalisés dans le domaine de l'usinage assisté par ordinateur, il est désormais possible de fabriquer des surfaces optiques aux géométries complexes et non standard avec une précision et une résolution remarquable. Dans l'industrie de la production en série, le polissage assisté par ordinateur est couramment utilisé, qu'il s'agisse de techniques directes ou de méthodes utilisant des micro/nano particules magnétiques (Magnetorheological Finishing). Pour des pièces plus complexes et pour le prototypage, l'usinage direct au diamant représente une solution extrêmement efficace. En résumé, l'usinage diamant de précision s'apparente à une machine CNC dotée d'un outil de petite taille mais offrant une résolution nanométrique de positionnement. La conception axiale de notre système justifie l'utilisation d'un tour d'usinage diamant de haute précision.

Nous disposons donc de la conception globale et de la technique de fabrication, mais il fallait encore concrétiser cette conception.

La première approche a été de s'inspirer des objectifs réfléchitifs standards de type Schwarzschild. Cela implique le choix technique de recourir à des surfaces réfléchissantes sous forme de miroirs métalliques. Plusieurs pièces mécaniques intégrant des surfaces usinées avec une grande précision doivent être réalisées. Ces pièces doivent permettre un positionnement fin et un verrouillage précis.

Chaque surface miroir doit être polie, recouverte d'une couche réfléchissante (généralement en argent) et protégée contre l'oxydation. Concrètement, cela nécessite au moins trois pièces usinées avec une grande précision pour supporter les surfaces réfléchissantes, cf figure 39. Un défi se présente dans le maintien de la parabole et d'une des surfaces planes au centre de l'axe optique, ce qui nécessite une structure de soutien physique composée d'au moins trois bras. Cette configuration est courante dans les optiques catoptriques, comme dans les télescopes ou les objectifs de Schwarzschild. Bien sûr, cette structure de soutien induit une obscuration dans le trajet optique, entraînant une perte de signal optique et des phénomènes de distorsion tels que les aigrettes de diffraction. Néanmoins, des optimisations de taille et de forme peuvent atténuer ces inconvénients.

Cependant, cette voie de fabrication a été abandonnée suite à des échanges avec les fabricants d'optiques de précisions. En effet, leur expertise nous a été d'une aide cruciale pour déterminer la voie de réalisation de l'objectif. Dans le cas de cette solution de miroirs métalliques, le problème limitant réside dans le fait que les procédés de dépôts des revêtements réfléchitifs et de protections en oeuvre dans l'industrie ne sont pas compatibles avec les spécificités de nos surfaces. Le problème majeur repose sur le fait que nos surfaces présentent des courbures importantes, c'est à dire des pentes locales importantes, or les dépôts sont effectués via des techniques de dépôt physique par phase vapeur (PVD, Physical Vapor Deposition). ces techniques sont très adaptées pour des échantillons globalement plats, ou avec de faible courbure (miroir de télescope par exemple). Mais dans notre cas, il est paru évident aux professionnels du domaine que cela n'allait pas être possible. Nous aurions pu imaginer recourir à des méthodologies de dépôts par couche atomique (ALD, Atomic Layer Deposition) qui permettent d'avoir des couches d'extrêmement haute uniformités d'épaisseur pour des formes arbitraires, mais les spécialistes du domaine ne maîtrisaient pas ces techniques. La solution la plus simple pour passer outre ce problème est de purement ignorer ces étapes de dépôts de couches, c'est à dire choisir un matériau de départ qui une fois usiné et poli permette une réflexion spéculaire de la lumière. C'est effectivement le cas de l'aluminium, qui permet de réaliser des miroirs de relativement bonnes performances optiques dans une utilisation généraliste.



**Figure 39:** Exemple d'implémentation de la conception via des miroirs métalliques. Plan de coupe d'un système utilisant trois pièces pour positionner les quatre surfaces. La pièce centrale, en orange, est maintenue en position grâce à une structure de maintien de trois bras, nommée 'spider' dans les systèmes catoptriques.

Après consultation avec l'entreprise d'usinage, il a été annoncé que, sur la base de leur expérience avec l'utilisation de leurs alliages d'aluminium dans leurs procédés d'usinage diamant, on pouvait s'attendre à un taux de réflectivité pour chaque surface d'environ 90%. Bien que cette valeur puisse être acceptable pour des systèmes à un ou deux miroirs, dans notre cas, nous visons une transmission du système aussi élevée que possible. Or, une réflectivité de 90% par miroir dans un ensemble de quatre miroirs signifie que la transmission totale du système serait de  $0.9^4 = 65\%$ . Cela implique que la fabrication de cet objectif serait intrinsèquement limitée à une transmission de 65%. À titre de comparaison, l'objectif de microscopie Zeiss utilisé dans le setup AFM-NV du chapitre 2 présente une transmission de 95%. Il nous fallut donc abandonner l'idée de fabriquer d'utiliser des surfaces métalliques en tant que miroirs.

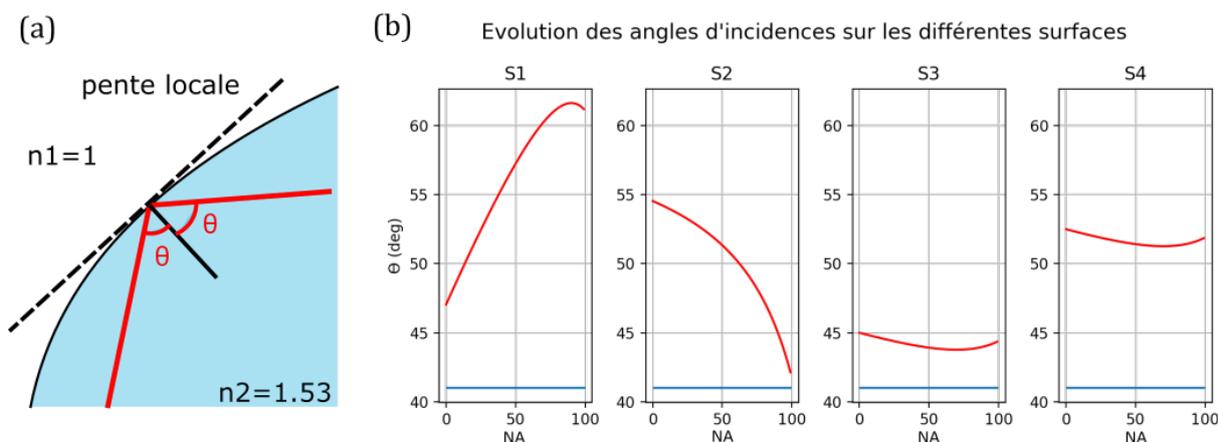
Une autre méthode pour réaliser des réflexions spéculaires consiste à utiliser la réflexion interne totale entre deux milieux ayant des indices optiques différents. L'idée est d'employer un milieu optique transparent à fort indice optique (Zeonex 480R, avec un indice de 1.53) comme milieu de transport du faisceau optique. Certaines de ses interfaces avec le milieu extérieur (air ou vide, avec un indice de 1) servent alors de surfaces de réflexion. Si ces interfaces sont usinées pour correspondre aux définitions mathématiques de nos surfaces calculées précédemment, nous obtenons un système catoptrique de focalisation.

La difficulté réside dans le fait que la réflexion interne totale ne peut se produire que sous certaines conditions d'angle d'incidence, dictées par les indices de réfraction des milieux. L'angle d'incidence par rapport à la normale de l'interface doit être supérieur à l'angle critique, donné par :

$$\theta = \arcsin \frac{n_2}{n_1} = \arcsin \frac{1}{1.53} = 41^\circ \quad (3.3)$$

Cela signifie que si, dans notre conception, chaque rayon incident sur les surfaces de réflexion présente un angle supérieur à  $41^\circ$ , alors la réflexion sera totale. Pour prendre une marge de sécurité, nous avons fixé un angle minimal de  $42^\circ$  afin de compenser les

variations de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde. Nous avons élaboré des conceptions où les définitions des surfaces garantissent ce critère, cf figure 40.

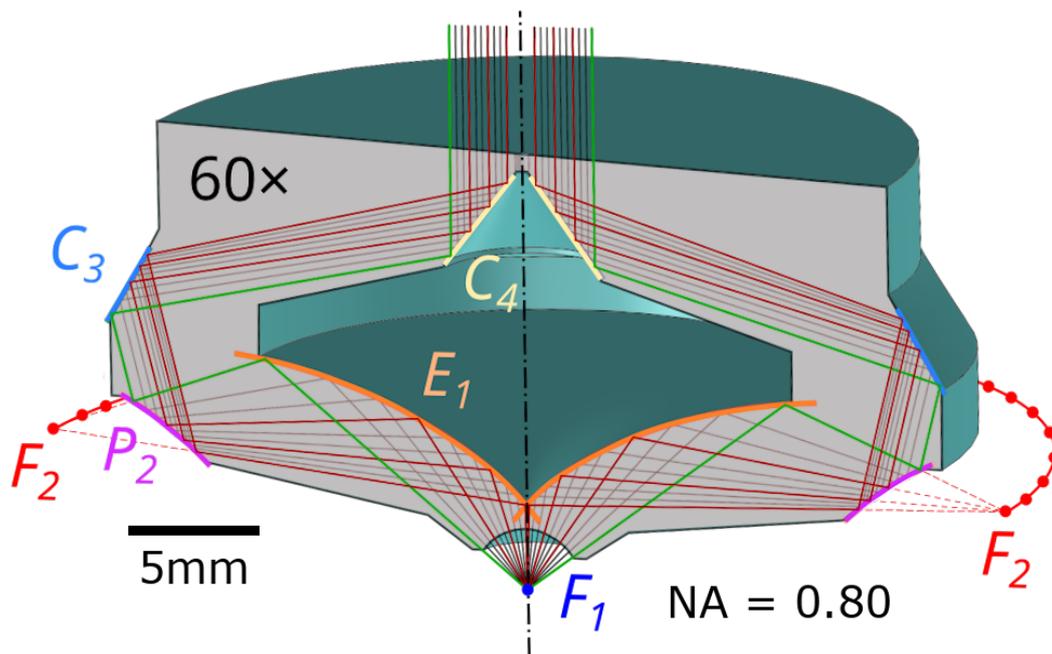


**Figure 40:** (a) Illustration de la réflexion interne totale entre deux matériaux d'indices optiques différents : Ce schéma montre comment la réflexion interne totale se produit à l'interface entre deux matériaux ayant des indices optiques distincts. L'élément clé de ce phénomène est l'angle de réflexion  $\theta$  à l'interface entre le rayon et la normale à l'interface. Pour un matériau comme le Zeonex 480R, typiquement utilisé dans le visible, cet angle est d'environ  $41^\circ$ . (b) Évolution des angles de réflexions  $\theta$  en fonction de l'ouverture numérique : Cette partie présente comment les angles de réflexions  $\theta$  varient sur chacune des quatre surfaces réfléchissantes en fonction du pourcentage de l'ouverture numérique. Un pourcentage de 0% correspond à un faisceau aligné avec l'axe optique, tandis que 100% représente l'ouverture maximale, ici fixée à 0.75. La limite de la réflexion interne totale est indiquée par des lignes horizontales bleues. Ces courbes montrent que notre conception respecte les conditions de réflexion interne totale sur toutes ses surfaces avec l'ouverture numérique donnée..

Ainsi, un modèle 3D de notre conception peut être élaboré. Ce modèle servira de base pour la fabrication et fournira également un fichier pour des simulations optiques 3D plus avancées que celles réalisées précédemment à l'aide d'un programme de simulation d'optique géométrique 2D fait maison. La conception doit également intégrer des surfaces d'entrée et de sortie pour les faisceaux perpendiculaires au trajet lumineux. Dans notre cas, ces surfaces prennent la forme d'une sphère pour l'entrée et d'un plan pour la sortie, comme illustré dans la figure 41.

À ce stade, nous nous sommes principalement basés sur les recommandations du sous-traitant pour le choix du matériau Zeonex, ainsi que sur les quelques données disponibles concernant le Zeonex 480R. Toutefois, étant donné que le faisceau laser d'excitation et le faisceau de fluorescence traverseront le même matériau, il était impératif de vérifier que le Zeonex 480R ne présente pas de fluorescence propre sous une illumination à 532 nm dans les gammes de longueur d'onde que nous étudions. Si tel était le cas, sa fluorescence interférerait avec le signal du centre NV, le rendant indétectable ou du moins difficile à analyser.

Pour vérifier cette caractéristique, nous avons effectué des mesures en utilisant un dispositif expérimental conçu pour tester la fluorescence des centres NV. Dans ce cadre, un échantillon de Zeonex a été placé en amont du plan focal d'un système confocal dédié à la fluorescence NV.

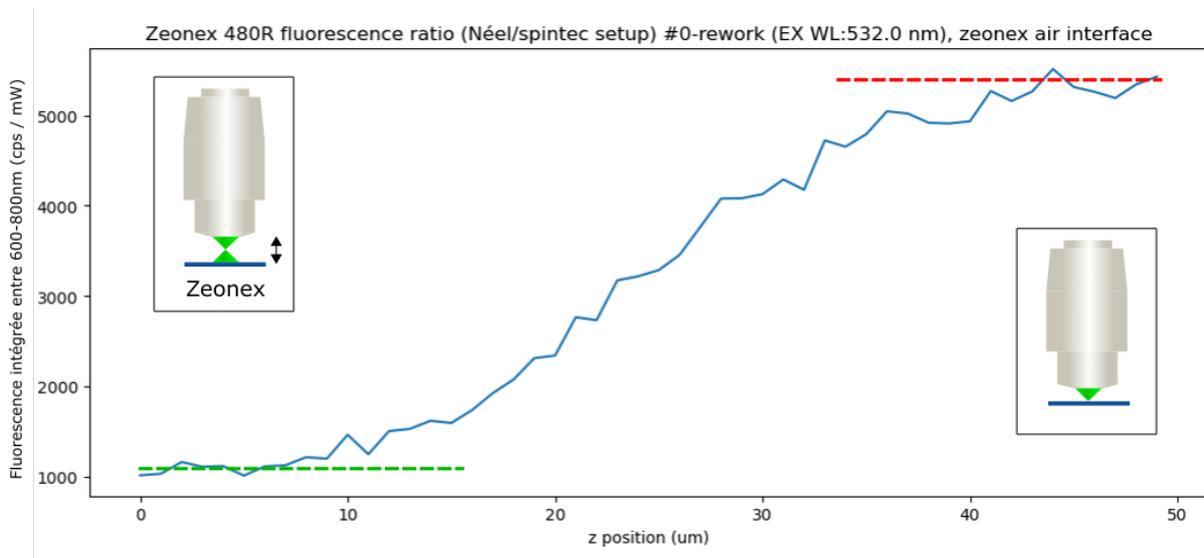


**Figure 41:** *Vue en coupe d'un objectif Lartigue 60× avec des rayons de lumière corrigés à l'infini superposés par une source ponctuelle en  $F_1$ . L'ellipse  $E_1$  ayant pour foyers  $F_1$  et  $F_2$  est la génératrice de la surface intérieure inférieure de révolution. Elle est conjuguée à  $P_2$ , une parabole ayant pour foyer  $F_2$ , la génératrice de la surface extérieure inférieure de révolution. Les faisceaux parallèles résultants sont repliés sur l'axe par deux surfaces coniques supérieures  $C_3$  et  $C_4$ . Lorsque ces surfaces sont usinées dans un matériau transparent avec un indice optique  $n \geq 1,5$ , tous les rayons sont déviés par réflexion interne totale. L'élément optique compact est équivalent à une lentille de  $f = 3,5$  mm avec une ouverture numérique (NA) de 0,80, une distance de travail de 2 mm, et sans aberrations chromatiques, sphériques ou astigmatiques. Le faisceau vert souligne le chemin de lumière suivi par l'éclairage en champ sombre.*

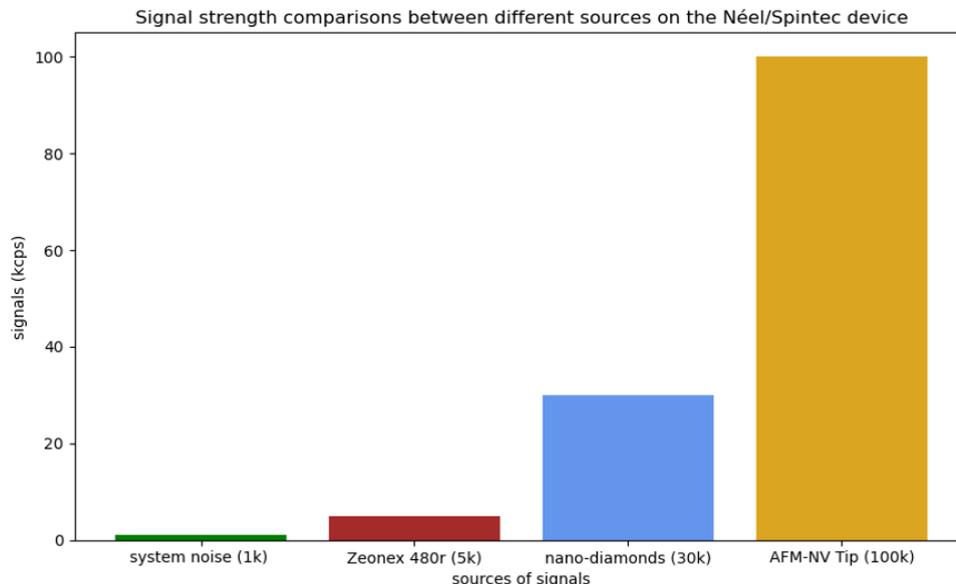
L'échantillon est ainsi illuminé par un laser à 532 nm, et le signal émis dans cette zone est observé dans une gamme de longueurs d'onde allant de 600 nm à 800 nm. À  $z = 0$ , le dispositif expérimental ne détecte aucun signal de fluorescence émanant du Zeonex, ce qui nous permet de mesurer le bruit intrinsèque de l'instrument. Ensuite, nous déplaçons l'échantillon en direction de l'objectif jusqu'à observer une saturation du signal de fluorescence. Cette saturation représente la somme de la fluorescence du système et de celle du Zeonex, comme illustré dans la figure 42. Ce protocole expérimental nous permet de quantifier la contribution potentielle du Zeonex à la fluorescence globale et de vérifier si celle-ci est négligeable par rapport au signal du centre NV.

Dans ce protocole, le faisceau laser est concentré sur une petite zone d'environ 500 nm de diamètre par le système confocal. L'intensité surfacique du laser est alors supérieure à celle que l'on rencontrerait dans notre conception, plaçant ces mesures dans un cas défavorable pour la fluorescence du matériau. Malgré ces conditions, lorsque l'on compare cette fluorescence à celle d'un centre NV unique dans un nanodiamant, ou au bout d'une pointe AFM-NV mesurée avec le même dispositif, la contribution du Zeonex apparaît comme faible et peut être négligée. Cette observation est illustrée dans la figure 43. Ce résultat est encourageant et suggère que le Zeonex 480R est un matériau viable pour notre

conception d'objectif.



**Figure 42:** *Mesure confocale de la fluorescence d'un échantillon de Zeonex 480R. Le dispositif expérimental permet de mesurer la fluorescence relative du Zeonex 480R par rapport à l'air au point focal d'un objectif. Dans le cas présent la mesure commence dans l'air et permet de déterminer le bruit de fluorescence intrinsèque du dispositif, le point de focalisation est ensuite déplacé dans le matériau afin de mettre en évidence sa fluorescence. L'excitation a lieu à 532nm et la détection entre 600 – 800nm.*



**Figure 43:** *Comparaisons de la fluorescence relative de différents échantillons sur un même système de mesure confocale à une puissance représentative de 1mW. On retrouve la fluorescence du système de mesure, la fluorescence du Zeonex 480R, la fluorescence d'un nanodiamnt présentant un centre NV unique et enfin la fluorescence d'un centre NV dans une pointe AFM commerciale.*

### 3.3.3 Optimisations pour l'imagerie

Après avoir validé la pertinence du matériau utilisé et défini une conception de base, nous avons entrepris de simuler les performances optiques de notre objectif en utilisant le logiciel de référence Zemax (OpticStudio, Ansys). Les simulations ont été élaborées autour du modèle 3D de LARTIGUE, complété par une lentille de focalisation théoriquement "parfaite" (sans aberrations) et d'une distance focale de 200 mm. Nous avons positionné une source lumineuse au niveau du plan objet de l'objectif et un capteur au plan image de la lentille parfaite. En modifiant les paramètres de ces éléments, nous avons pu réaliser une série de simulations pour évaluer les performances optiques fondamentales du système.

Ces simulations nous ont permis d'examiner divers aspects tels que la résolution, l'aberration chromatique, l'ouverture numérique, et d'autres paramètres optiques essentiels. Les résultats de ces simulations sont cruciaux pour valider notre conception et pour effectuer les ajustements nécessaires avant de procéder à la phase de fabrication.

Il est vite devenu évident que notre objectif offrait des performances optimales pour une utilisation confocale au point focal. Cependant, les performances se dégradent significativement dès qu'on s'écartait de l'axe optique. En pratique, cela signifie que l'objectif était capable de résoudre parfaitement un point situé à son point focal, mais perdait cette capacité de résolution dès que la source lumineuse était déplacée hors de l'axe optique, tout en restant dans le plan perpendiculaire à cet axe et passant par le point focal. Cette limitation rend l'objectif très performant pour des applications de spectroscopie ou de microscopie confocale ponctuelle, mais le rend inadapté pour des tâches d'imagerie plus étendues, comme le montre la figure 46.

Cette limitation était problématique pour la flexibilité dans le positionnement de l'échantillon et du centre NV ou pour des techniques d'imagerie nécessitant une bonne résolution sur un champ plus large. Les prochains paragraphes vont détailler les ajustements de conception entrepris pour améliorer ces performances hors de l'axe optique.

Il est crucial de reconnaître que, au-delà des défis inhérents à la conception d'un système optique pour une focalisation idéale, la résolution est intrinsèquement limitée par la diffraction, une conséquence directe des propriétés ondulatoires de la lumière. Un système optique est considéré comme hautement performant quand les aberrations qu'il induit sont équivalentes ou inférieures à cette limite de diffraction. En d'autres termes, les imperfections du système optique devraient être minimales ou négligeables par rapport aux limitations physiques imposées par la nature ondulatoire de la lumière.

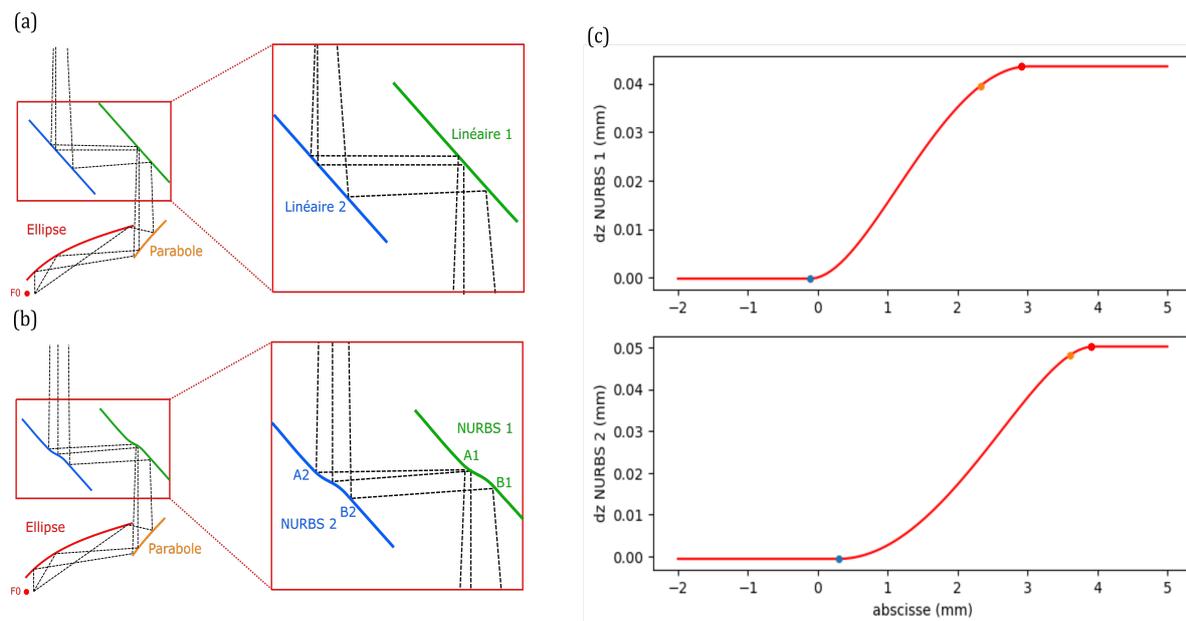
Dans un système optique idéal, un faisceau lumineux parallèle convergerait en un point unique. Si une source lumineuse ponctuelle se déplace le long du plan focal, les rayons émergents de la lentille devraient rester parallèles entre eux. Ainsi, une lentille de focalisation théoriquement parfaite transformerait une position sur le plan focal en un angle spécifique de sortie du faisceau, où tous les rayons seraient parallèles entre eux.

Cependant, dans un système optique réel, l'idéal de parallélisme parfait des rayons sortants n'est jamais totalement atteint, empêchant la formation d'une image nette au-delà du point focal. La focalisation atteint une précision optimale uniquement au niveau d'une ou une zone proche du point focal, et non dans ses environs, modulo la limite de diffraction.

Ces performances sont le résultat de problématiques d'aberrations géométriques dues à la conception de l'objectif. Dans notre cas, il s'agit d'aberrations de coma provenant de l'utilisation de surfaces coniques, l'ellipse et la parabole. Ces aberrations apparaissent lorsque le point source n'est pas exactement au point focal du système optique.

Les aberrations géométriques induites par l'utilisation de surfaces coniques sont un défi bien connu en optique. Bien que ces problématiques n'aient pas été largement explorées dans le domaine de la microscopie à notre connaissance, elles ont été étudiées de manière approfondie en astronomie, où plusieurs stratégies de correction ont été développées.

Ces stratégies reposent généralement sur l'intégration de dioptries correcteurs au sein du système optique. L'exemple le plus célèbre est la lame de Schmidt, et dans une moindre mesure celle de Maksutov, où le but est de pré-corriger les trajectoires des rayons lumineux avant qu'ils n'interagissent avec le système catoptrique, afin de réduire les erreurs de focalisation en sortie. Des principes similaires sont appliqués dans les conceptions des télescopes Argunov-Cassegrain et Klevtsov-Cassegrain, où la correction dioptrique est effectuée à différents stades du trajet optique. Contrairement à notre approche, qui repose sur une correction via deux réflexions, ces systèmes utilisent deux réfractions successives pour atteindre la correction souhaitée.



**Figure 44:** Comparaison des conceptions optiques utilisant des surfaces linéaires et des surfaces NURBS. (a) Schématisation d'une conception avec surfaces linéaires : Cette partie illustre une conception optique utilisant un couple ellipse/parabole avec des surfaces linéaires. Pour trois faisceaux émis avec des espacements angulaires identiques au point d'émission, on observe une inhomogénéité dans la densité du faisceau de sortie, résultant de la combinaison de l'ellipse et de la parabole. Dans le cas où le point objet est sur le plan focal mais en dehors de l'axe optique, les faisceaux sortant du couple ellipse/parabole ne seront pas parallèles entre eux et les surfaces linéaires n'influenceront pas cela. (b) Conception avec surfaces NURBS : Dans cette configuration similaire, l'utilisation de deux surfaces NURBS composées de sigmoïdes permet de corriger les inhomogénéités post ellipse/parabole. Ces surfaces NURBS aident également à ramener le faisceau près de l'axe optique, améliorant ainsi l'uniformité et la focalisation du faisceau. Dans le cas d'un point objet hors-axes optique les NURBS permettront d'augmenter le parallélisme des rayons entre eux et donc de diminuer les aberrations géométriques. Après les NURBS les rayons présentent un parallélisme accru et une homogénéité de faisceau augmentés. (c) Description des surfaces NURBS par rapport aux surfaces linéaires : Cette section présente les surfaces NURBS projetées sur le référentiel des surfaces linéaires correspondantes. Il s'agit de la différence entre chaque surface linéaire et chaque surface NURBS correspondante, mettant en évidence les modifications apportées par les NURBS pour optimiser la focalisation et l'uniformité du faisceau. Cette optimisation est cruciale pour l'imagerie directe, c'est à dire la focalisation sur le plan focal en dehors de l'axe optique.

L'introduction d'un dioptre dans un système optique, bien que bénéfique pour la correction des aberrations géométriques, compromet inévitablement l'achromatisme du système en raison de la nature intrinsèquement chromatique de la réfraction. Cette perte d'achromatisme est généralement tolérable en astronomie, où les faibles angles d'incidence des rayons en provenance de l'espace entraînent une dispersion chromatique minimale et donc un impact acceptable sur la performance optique.

Cependant, en microscopie, où les angles d'incidence sont plus importants, le chromatisme résultant peut sérieusement dégrader la qualité de l'imagerie. Dans notre projet spécifique, nous visons une performance optique de haute précision avec un achromatisme strict au point focal. Par conséquent, l'utilisation d'un dioptre, avec sa dispersion chromatique inhérente, serait incompatible avec notre nécessité.

Les progrès dans la correction des aberrations géométriques coniques ont principalement eu lieu dans l'astronomie, où les solutions dioptriques ont montré une efficacité suffisante. La facilité relative de fabrication de grands miroirs avec des géométries conventionnelles (sphériques, coniques, etc.) grâce à des techniques bien établies a prédominé sur le développement de systèmes compensatoires basés sur des miroirs aux formes plus complexes. Cette préférence est renforcée par la complexité et les risques liés à la création de surfaces réfléchissantes plus sophistiquées.

Le télescope spatial Hubble illustre bien ces défis : un de ses miroirs, fabriqué avec des techniques d'usinage assisté par ordinateur, présentait une erreur de fabrication ayant causé des aberrations significatives. Une mission de la navette spatiale a dû être envoyée pour installer une optique corrective en orbite.

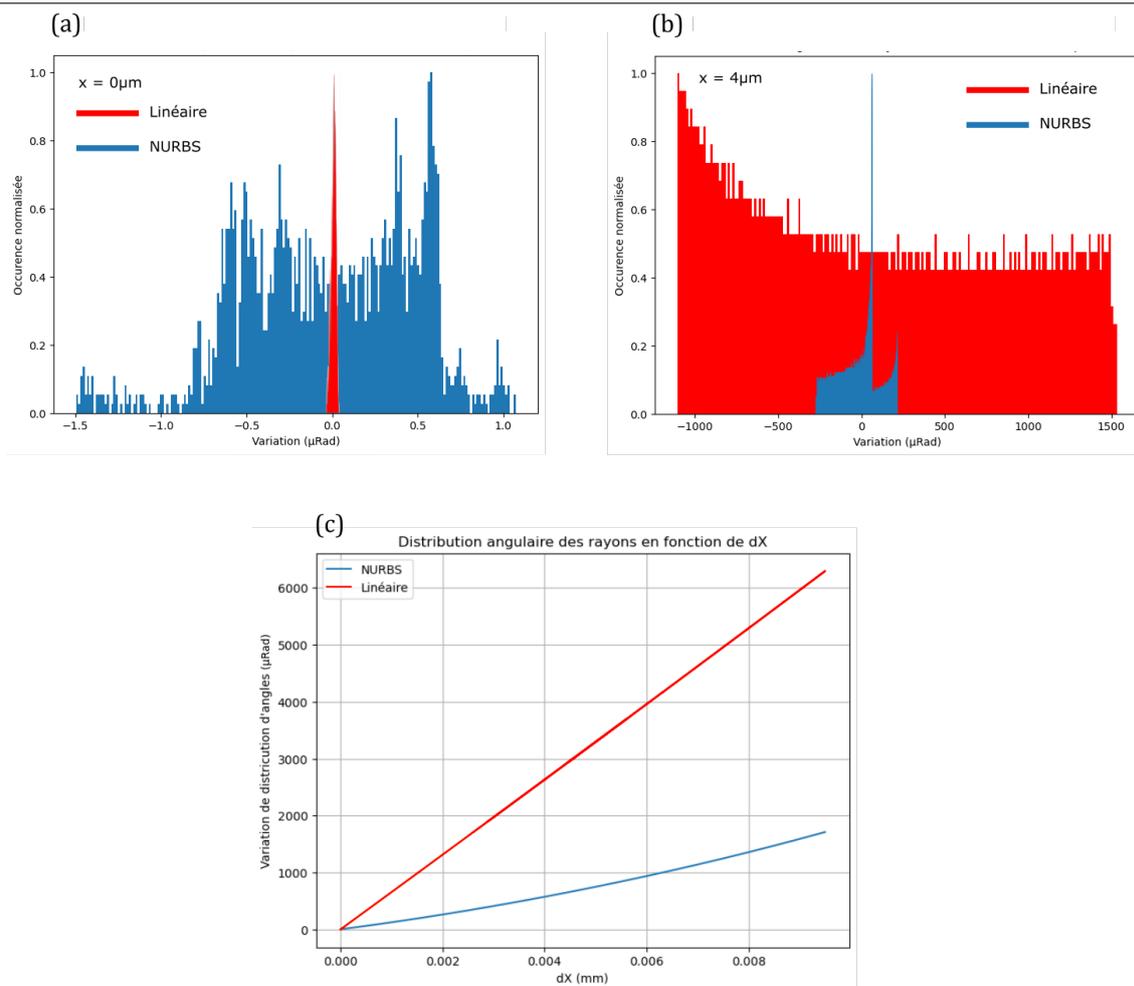
La correction des aberrations par réflexion nécessite de maîtriser l'usinage de formes très complexes sur plusieurs surfaces, un défi considérable en termes de conception et de fabrication. Ces exigences vont souvent au-delà des capacités standard de l'industrie et impliquent un niveau de risque élevé.

Dans notre cas, nous avons corrigé les deux surfaces « linéaires » du design initial en modifiant légèrement les définitions des deux courbes via des sigmoïdes, avec une variation de l'ordre de  $50\mu\text{m}$ . Ces variations et leurs effets sur les rayons sont illustrés dans la figure 44. Nous désignons ces surfaces modifiées comme NURBS (Non Uniform Rational B-splines).

L'objectif de ces corrections est de réduire la dispersion angulaire des rayons après la collimation du faisceau, en faisant correspondre les positions d'intersection du faisceau avec une surface réfléchissante à une pente locale précise, et ce pour les deux surfaces simultanément. Cela implique une optimisation pour réduire la dispersion sur un champ de vision donné via des simulations numériques.

Pour cela, nous avons défini un modèle mathématique basé sur des sigmoïdes et demandé à notre simulation d'optimiser les paramètres de ces courbes afin de limiter la dispersion pour un champ de vision spécifique. Ces modifications réduisent les performances de focalisation au point focal en élargissant la dispersion des directions des rayons, mais l'impact reste négligeable car la limitation de focalisation demeure dictée par la limite de diffraction.

Cependant, les performances de focalisation hors du point focal se sont considérablement améliorées. La dispersion angulaire sur une plage de  $10\mu\text{m}$  a été fortement diminuée, comme le montre la figure 45. On observe non seulement une plage de dispersion réduite, mais aussi une distribution des angles très différente par rapport aux surfaces linéaires. Avec les NURBS, on constate deux pics de distribution angulaire, relativement étroits et contenant la majorité des rayons, indiquant une dispersion moindre de l'énergie optique et donc une image plus nette comparée à celle obtenue avec les surfaces linéaires, qui produiraient des taches plus étendues et uniformes.



**Figure 45:** (a) Distributions angulaires des faisceaux pour un objet ponctuel au point focal avec surfaces linéaires (rouge) et NURBS (bleu). (b) Distribution angulaire pour surfaces linéaires et NURBS avec un décalage de  $dx = 4 \mu\text{m}$ . (c) Évolution de la distribution d'angles en fonction de  $dx$  pour les surfaces NURBS et linéaires, indiquant une moindre performance de parallélisme pour les linéaires.

Les optimisations ont été réalisées grâce à notre programme de simulation 2D en Python. Nous avons ensuite utilisé les résultats de ces optimisations pour créer des modèles 3D correspondants de LARTIGUE dans le logiciel de CAO SolidWorks. Ces modèles 3D ont été conçus de sorte que leurs coupes soient exactement alignées avec les modèles 2D optimisés. SolidWorks permet de générer des surfaces et des volumes en 3D via des NURBS et de transférer ces modèles avec précision grâce au format STEP (STandard for the Exchange of Product model data).

Ces fichiers servent alors à la fois pour la fabrication et pour des simulations plus avancées des performances optiques avec le logiciel Optic Studio Zemax. Le parcours optique simulé comprend une source ponctuelle de longueur d'onde et d'ouverture numériques spécifiques, suivie du modèle 3D de l'objectif composé dans Zemax et placé dans le vide (Zemax prenant automatique en compte la réfraction et la réflexion interne totale), d'une lentille "parfaite" de focale de 200mm correspondant à la focale standard de l'industrie, et enfin d'une zone de détection au niveau du foyer image du système.

Cette configuration permet d'effectuer un grand nombre de simulations. Dans un premier temps, nous nous sommes concentrés sur les simulations en tracé de rayons.

Zemax, tout en ignorant l'aspect ondulatoire de la lumière, prend en compte la réfraction optique et introduit une dimension tridimensionnelle par rapport aux travaux précédents, permettant ainsi de réaliser des simulations d'imagerie pour évaluer les performances de l'objectif.

Deux tests clés sont effectués : l'imagerie d'une mire de calibration avec des motifs calibrés pour une évaluation qualitative des performances d'imagerie, et des mesures quantitatives via la fonction de transfert de modulation (MTF), qui évalue le contraste entre des zones de différents niveaux de finesse de détails discernables dans une image. Les figures 46 (b) et (c) illustrent respectivement les images obtenues avec les surfaces linéaires et les surfaces NURBS d'un objet (a) positionné sur le plan focal objet de LARTIGUE. Les corrections apportées aux surfaces linéaires montrent une nette amélioration des performances d'imagerie. Avant correction, le système ne peut imaginer qu'un point extrêmement petit au centre du champ de vision, essentiellement au niveau du point focal, le reste de l'image étant très flou. Après correction, le système révèle clairement des motifs fins de l'objet sur une zone de plusieurs micromètres de large, grâce à une dispersion angulaire des rayons réduite.

Enfin, la figure 46 (d) et (e) présente les MTF de la version linéaire et de la version corrigée de l'objectif pour différents décalages de la source sur le plan objet. Dans les deux cas, la courbe bleue représente la limite physique de la MTF, dictée par la longueur d'onde et les paramètres du système:

$$M(vs) = \frac{2}{\pi} \left( \arccos \left( \frac{\lambda \cdot vs}{2 \cdot NA} \right) - \frac{\lambda \cdot vs}{2 \cdot NA} \cdot \sqrt{1 - \left( \frac{\lambda \cdot vs}{2 \cdot NA} \right)^2} \right) \cdot Mag \quad (3.4)$$

$$v_c = \frac{2 \cdot NA}{\lambda} \cdot Mag \quad (3.5)$$

- $M(vs)$  représente la modulation en fonction de la fréquence spatiale  $vs$ ,
- $v_c$  est la fréquence de coupure correspondant à une optique idéale,
- $\lambda$  est la longueur d'onde utilisée,
- $NA$  est l'ouverture numérique de LARTIGUE,
- $Mag$  est le grandissement du système,

Une critique potentielle concernant cette analyse pourrait se focaliser sur l'indétermination du grandissement de l'objectif, qui introduit une distorsion dans l'image. Cette distorsion se manifeste par une variation du grandissement en fonction de la distance entre la source lumineuse et l'axe optique, ainsi que par une dispersion légère de la tâche en dehors de l'axe, comme illustré par la figure 47 (b). Nous avons attribué à notre objectif un grandissement ( $Mag = 62.5$ ), valeur typique observée dans nos simulations, correspondant à une fonction de transfert de modulation (MTF) idéale indiquant que l'objectif atteint la limite de diffraction, comme le confirment les analyses de la fonction d'étalement du point (PSF) de la figure 47 (a). Ce facteur de grandissement sert de base pour le calcul de  $v_c$ , nécessaire à la normalisation des données entre la MTF théorique de LARTIGUE et les simulations effectuées avec une seconde lentille idéale de 200mm, le grandissement étant défini comme le rapport entre la focale de cette dernière et celle de LARTIGUE.

Nous notons une amélioration considérable des performances entre la version linéaire et la version corrigée (NURBS) du design. Dans le premier cas, même aligné sur l'axe optique, le système peine à résoudre de manière optimale les détails fins. En effet, il ne parvient pas à se rapprocher de la limite théorique représentée par la MTF idéale,

illustrée en bleu dans la figure 46 (d). Cette limitation est évidente lorsqu'on examine l'image produite par ce design, figure 46 (b). Lorsqu'on s'éloigne de l'axe optique, la clarté de l'image se détériore, ce que la MTF capture précisément. Or, ce design initial n'a pas été conçu pour gérer ce type de défi. Si le point source est déplacé hors de l'axe optique, mais toujours sur le plan objet, les performances se dégradent encore plus rapidement, comme l'illustrent les images générées.

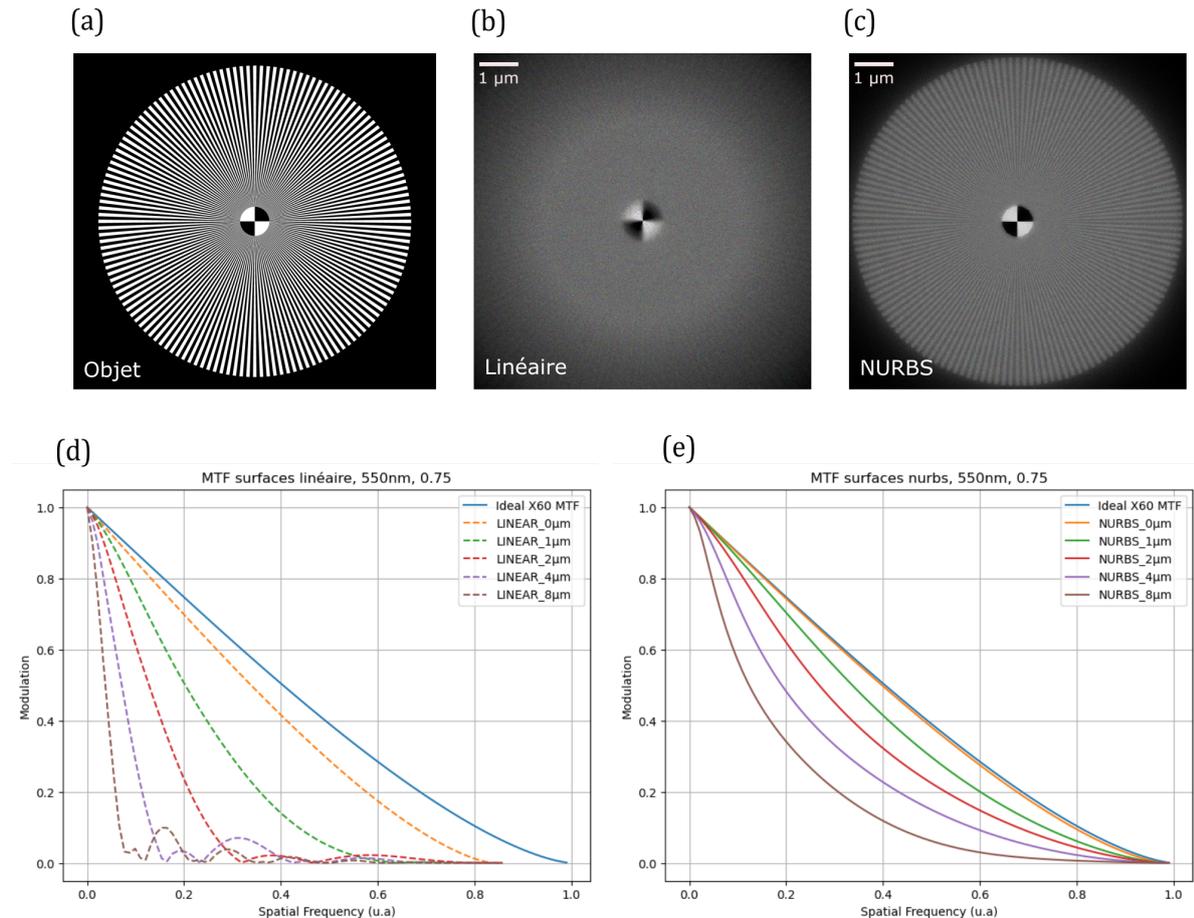
En revanche, le système NURBS corrigé offre des performances proches de l'idéal quand le point source est sur l'axe optique, figure 46 (e), et maintient des performances acceptables lorsque ce point source est décalé. Bien que l'on constate une baisse des performances, elle est bien moins marquée que pour le design linéaire. La figure figure 46 (c) ne rend pas compte de ces variations de performances, car la finesse des détails de l'objet diminue à mesure que l'on s'éloigne de l'axe optique. Cela signifie que si des détails fins près de l'axe optique peuvent être correctement imagés, cela ne sera pas le cas plus loin de l'axe, la MTF indiquant une perte des capacités de résolution. Toutefois, cette baisse de performance est à la fois contenue dans ce design corrigé et typique des systèmes d'imagerie en général.

Zemax permet également de réaliser des simulations prenant en compte l'aspect ondulatoire de la lumière, bien que cela exige un temps de calcul conséquent. Ce mode de simulation nous a permis de simuler les fonctions d'étalement du point (PSF) de l'objectif. Le principe consiste à examiner la fonction de transfert optique de l'objectif en partant d'un point source idéal et à observer la réponse du système, en particulier l'étalement du point. Dans un système à la limite de la diffraction, pour une source au point focal objet, l'image résultante correspond uniquement à une contribution venant de la diffraction de la lumière, formant une tache d'Airy.

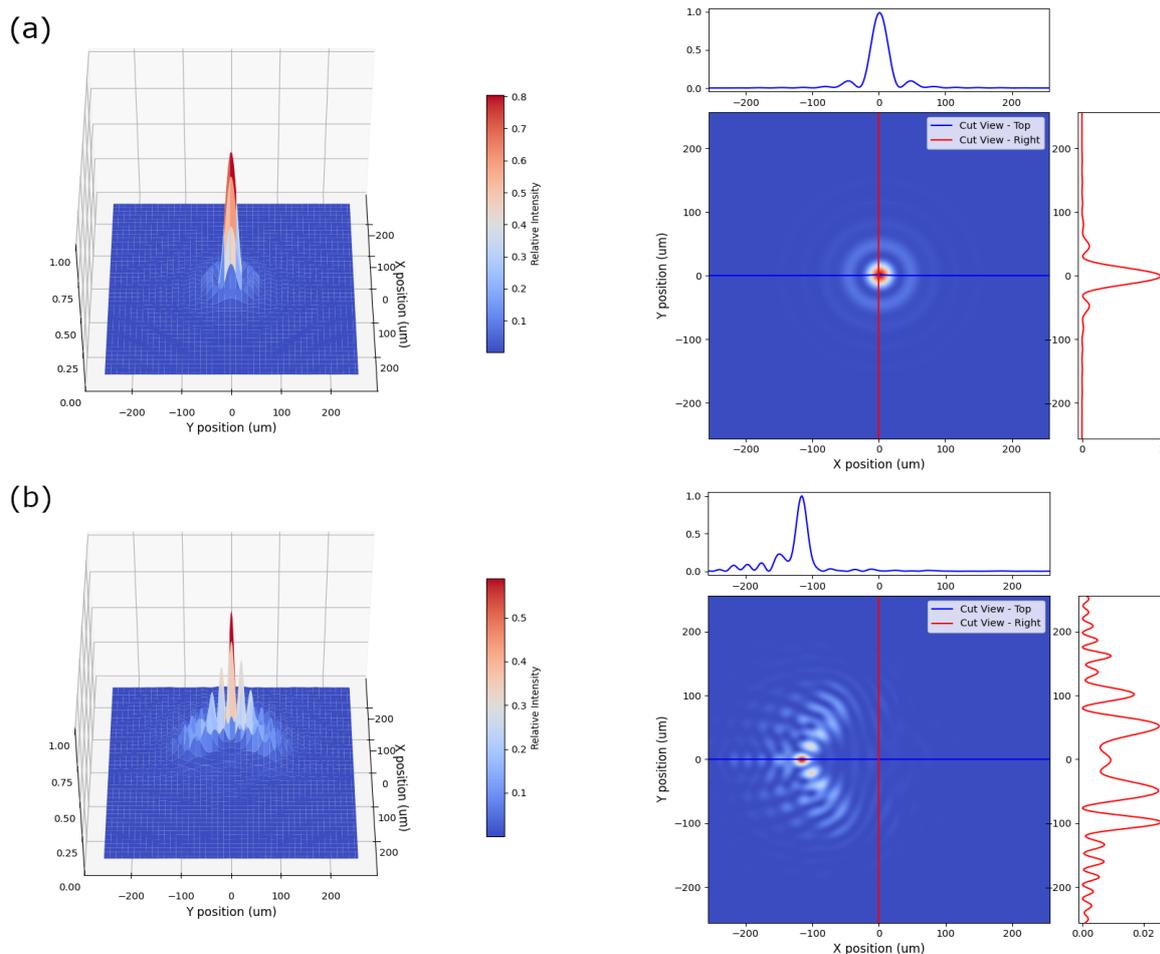
Nos simulations montrent effectivement une tache d'Airy, figure 47 (a), pour une source dans l'axe, confirmant ainsi que la conception est à la limite de la diffraction. Cependant, il est intéressant de noter que lorsque la source est placée sur le plan objet mais hors de l'axe, cette image est plus complexe qu'une simple tache d'Airy. Dans la figure 47 (b), lorsque la source est située relativement loin de l'axe optique, à  $10\mu\text{m}$ , l'image présente plusieurs maxima locaux. Cette distorsion correspond aux aberrations géométriques résiduelles que les corrections NURBS n'ont pas complètement éliminées, voire même introduites dans certains cas. La source ayant été déplacée selon l'axe  $x$ , on observe sur ce même axe, au niveau de l'image, plusieurs pics d'intensité. Les simulations 2D de distributions angulaires montrent un comportement analogue, ce qui confirme que les résultats sont cohérents avec les prédictions des simulations 2D. La lentille parfaite de  $200\text{mm}$  transforme une orientation en une position sur son plan image, d'où la correspondance entre la distribution angulaire en pics de la figure 45 et le plan image. La simulation de la PSF, tout en introduisant la diffraction, permet également d'observer le comportement sur l'ensemble du plan image, révélant que la PSF hors axe est plus complexe que ce que la simulation 2D laissait entrevoir. Toutefois, bien qu'il y ait plusieurs pics, l'étalement de la lumière n'est pas extrêmement important par rapport à la PSF axiale, indiquant que les corrections apportées sont efficaces.

La réalisation d'un prototype pour notre objectif a été un processus particulièrement ardu, principalement en raison des exigences élevées de l'usinage diamant, nécessitant à la fois une expertise technique approfondie et des équipements de pointe. La disponibilité limitée de ces ressources a entraîné des retards significatifs dans notre projet.

Notre méthodologie de prototypage s'est appuyée sur des interactions fréquentes et continues avec une entreprise spécialisée dans l'usinage diamant. L'objectif était d'adapter notre conception aux capacités de fabrication disponibles. Concrètement, cela s'est traduit par le choix de réaliser le prototype par réflexion interne totale, éliminant ainsi la nécessité d'un revêtement réfléchissant et autorisant l'utilisation de Zeonex.



**Figure 46:** (a) Cible de calibration pour l'identification des aberrations : Illustration d'une cible de calibration placée au plan objet de l'objectif, utilisée pour identifier les aberrations de mise au point dans les simulations. (b) Image simulée par traçage de rayons Zemax pour un objectif avec surfaces linéaires : Simulation montrant les aberrations d'imagerie directe sur un champ de vision de  $10\ \mu\text{m}$  pour un objectif utilisant un couple ellipse/parabole avec des surfaces linéaires. L'image est nette uniquement dans une zone très restreinte au centre du champ de vision, près de l'axe optique, et devient floue à quelques centaines de nm de distance. (c) Simulation avec un design utilisant des NURBS : Image simulée pour un objectif avec des surfaces NURBS, montrant une résolution élevée sur une grande partie du champ de vision. La limitation principale est alors dictée par la physique de la lumière elle-même. (d) Fonction de transfert de modulation (MTF) pour le design linéaire : Analyse de la MTF à  $550\ \text{nm}$  pour une ouverture numérique de  $0.75$  et un grossissement de  $X62,5$ . Les différentes courbes représentent la MTF pour diverses positions du point source sur le plan objet, déplacées le long de l'axe  $x$ . Même sur l'axe optique ( $dx = 0\ \mu\text{m}$ ), la MTF est nettement inférieure à la courbe théorique idéale, et les performances diminuent rapidement avec l'éloignement de l'axe optique. La valeur de fréquence spatiale maximum est normalisée par la fréquence spatiale de coupure de la MTF idéale. (e) Évolution de la MTF pour un design NURBS : Les performances sur l'axe optique sont comparables à celles d'une MTF idéale, et bien que la qualité diminue en dehors de l'axe optique, la dégradation est moins prononcée que pour le design linéaire. Les performances de résolution observées via les MTF sont directement liées aux capacités d'imagerie illustrées précédemment.



**Figure 47:** (a) PSF sur le plan image pour une source ponctuelle au point focal objet : Cette image montre la fonction d'étalement du point (PSF) sur le plan image d'un système optique composé d'un objectif avec des surfaces NURBS et une lentille parfaite de 200mm. La source ponctuelle est placée au point focal objet de l'objectif. On observe un étalement symétrique du point, correspondant à la limite de diffraction de l'objectif, indiquant une haute qualité d'imagerie. (b) PSF pour une source déplacée de  $10\mu\text{m}$  de l'axe optique : Cette image représente la PSF pour une source située sur le plan focal objet de l'objectif, mais déplacée de  $10\mu\text{m}$  par rapport à l'axe optique. Bien que le maximum d'énergie soit concentré sur une surface réduite (indiquée par la pointe rouge), le point est étalé et déformé, prenant une forme caractéristique de coma. Cette déformation illustre l'impact de l'éloignement de l'axe optique sur la qualité de l'image.

Nous avons également convenu d'une conception en deux parties pour LARTIGUE : une partie inférieure comprenant l'ellipse et la parabole, et une partie supérieure abritant les surfaces NURBS corrigées. Ces deux composantes sont assemblées à l'aide d'une colle optique présentant le même indice de réfraction que le Zeonex, assurant ainsi l'intégrité du chemin optique. Pour minimiser les éventuels problèmes de réfraction à l'interface, la conception a été ajustée de sorte que les rayons émis d'un point focal traversent ces surfaces orthogonalement.

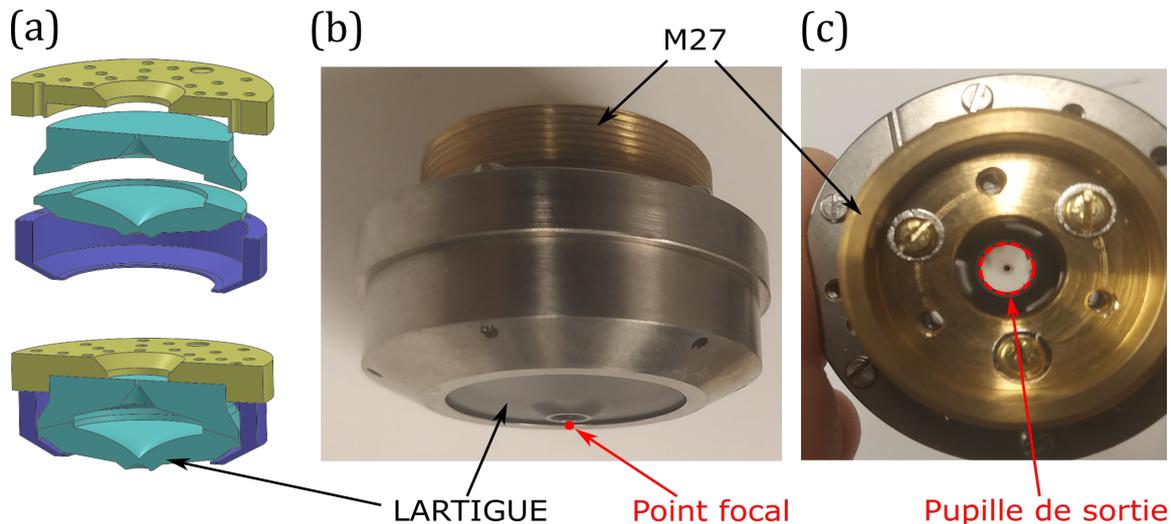
Cependant, le point le plus critique, qui se révélera par la suite, concernait la définition des tolérances mécaniques acceptables en termes de positionnement relatif des différentes surfaces. Deux limitations majeures ont été identifiées concernant les techniques d'usinage

et de fabrication utilisées par l'entreprise :

1. La précision de l'usinage elle-même, c'est-à-dire la fidélité avec laquelle la forme de la surface est usinée dans le matériau et la qualité de l'état de surface. Dans notre cas, l'usinage diamant garantit une précision d'environ 10nm, ce qui est tout à fait satisfaisant. Toutefois, cette technique laisse un motif d'usinage sur la pièce, sous forme de rainures microscopiques. Bien que ces rainures puissent créer des motifs de diffraction, un polissage manuel fin utilisant des grains ultra-fins peut éliminer ces motifs, assurant ainsi un état de surface optimal.

2. La seconde limitation, plus critique, concerne le positionnement relatif des surfaces les unes par rapport aux autres. Chaque surface ne pouvant pas être usinée en une seule étape, le repositionnement de la pièce entre chaque étape devient l'élément limitant en termes de précision et de justesse. La précision finale de positionnement d'une pièce dans la machine d'usinage est de l'ordre de  $1 - 5\mu\text{m}$ . De même, l'assemblage des deux parties de l'objectif est sujet aux mêmes contraintes de positionnement.

En résumé, bien que l'usinage diamant permette de réaliser des surfaces réfléchissantes avec une grande précision et un excellent état de surface, la principale difficulté réside dans le positionnement précis et fiable de ces surfaces les unes par rapport aux autres.



**Figure 48:** (a) Vue de coupe éclaté et assemblée de l'objectif avec sa protection. (b) objectif LARTIGUE. (c) Vue de l'objectif dans l'axe optique de sortie.

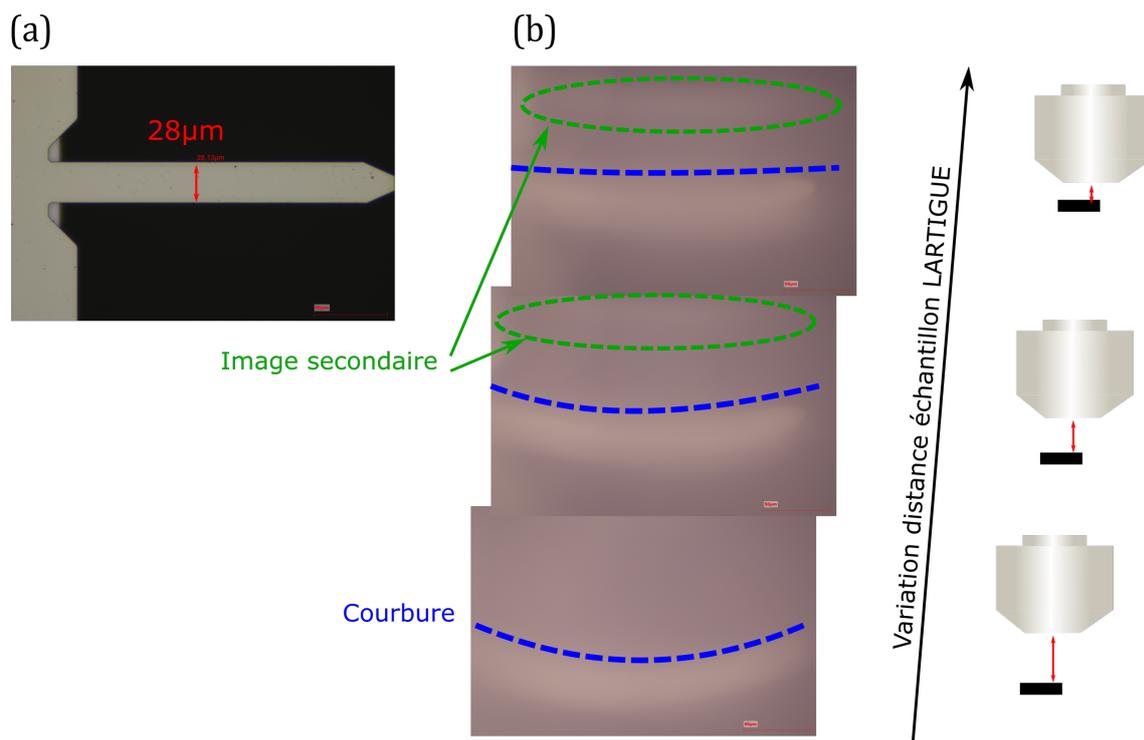
En fin d'année 2023, nous avons reçu le prototype de l'objectif LARTIGUE, cf figure 48. Celui-ci est protégé dans une coque de titane, permettant de manipuler le système sans risquer de toucher les surfaces réfléchissantes, ce qui laisserait des traces détruisant la réflexion interne totale, ainsi que tout un ensemble de pas de vis et un contact trois points pour fixer des accroches si nécessaire. Afin de faciliter les tests nous avons fixé un pas de vis mâle  $M27$  compatible avec les standards de Zeiss. Malheureusement il s'est très vite avéré que les aberrations optiques du prototype sont tellement importantes que cela ne nous permet même pas de pouvoir réaliser une campagne de tests poussés. Concrètement, l'objectif est capable de focaliser de la lumière, il est même capable de faire apparaître une image où on reconnaît des structures de l'échantillon. Mais dans les deux cas les aberrations sont tellement importantes qu'il est impossible de clairement comprendre comment elles agissent et d'où elles proviennent, comme illustré figure 49.

Effectivement, cette situation met en lumière plusieurs problématiques. Sur le plan matériel et optique, il semble plausible que les erreurs de positionnement des différentes

surfaces se soient cumulées, menant le système complet à sortir de sa zone de fonctionnement optimale. Une analyse à posteriori de la conception, appuie cette hypothèse : dans le pire des cas, où les erreurs s'additionnent, les simulations semblent confirmer cette déduction.

Ceci nous amène à une réévaluation critique de notre processus de conception et de réalisation. Pour le prototypage, nous avons eu tendance à nous fier aux tolérances mécaniques, avec un positionnement basé sur des mesures mécaniques précises et un verrouillage final des positions des surfaces, sans possibilité de modification ultérieure. Cette approche s'est avérée inadéquate. En optique, ce sont les performances optiques, et non les tolérances mécaniques, qui doivent guider la conception. Autrement dit, le positionnement des surfaces doit être ajusté en fonction des mesures de performance optique en temps réel, et c'est l'atteinte d'un certain niveau de performance optique qui doit déterminer le verrouillage des positions mécaniques.

Une seconde erreur stratégique concerne le fait que, dans notre conception actuelle, le verrouillage des surfaces est définitif. Les surfaces sont usinées ensemble dans une pièce, puis ces pièces sont collées, rendant impossible toute correction en cas d'erreur de positionnement. Cette méthode pourrait être efficace pour un design éprouvé, car elle garantit une meilleure stabilité à long terme et surtout en température (en contexte cryogénique par exemple), mais elle n'est pas adaptée au stade de prototypage.



**Figure 49:** (a) Image d'un objet micrométrique, un levier AFM d'environ  $30\mu\text{m}$  de large, fait à travers un microscope optique et un objectif Zeiss X50. (b) Images faites à travers le même microscope mais avec l'objectif LARTIGUE à différentes distances de travail. On observe des aberrations géométriques très importantes permettant tout de même de discerner les formes de l'objet. Les aberrations changent de nature en fonction de la distance de travail, cumulant du flou, de la courbure et des images multiples. Ces mesures sont complexes à interpréter, mais permettent de rendre compte des faibles performances optiques du prototype. Cependant le grandissement attendu de l'objectif est de l'ordre d'un X60, ce qui semble cohérent avec les images fournies.

Pour envisager la poursuite du projet, il faudrait adopter une approche de mise en œuvre où l'usinage et le positionnement se feraient sous illumination et avec des tests optiques en temps réel. Une mise en œuvre simplifiée, sans nécessité d'équipements d'usinage sous illumination, consisterait à usiner la première surface, la mesurer sur un banc optique, puis utiliser ces résultats pour optimiser la seconde surface, et ainsi de suite. Il serait probablement judicieux de revenir à un système à surfaces réfléchissantes métalliques, permettant une réalisation en pièces indépendantes, chaque pièce ayant une certaine liberté de réglage fin après usinage. Même si cette approche nécessite des développements dans les méthodes de dépôts de revêtements réfléchissants.

Par ailleurs, il existe des stratégies de modification des fonctions mathématiques définissant les surfaces réfléchissantes qui pourraient augmenter la robustesse du système face aux désalignements, mais ces stratégies dépassent le cadre de cette discussion.

### 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exploré le développement méthodique d'une nouvelle optique de focalisation basée sur la réflexion. Nous avons commencé par présenter un état de l'art des techniques de focalisation classiques en optique visible, mettant en lumière leurs spécificités et limitations, notamment dans le contexte des microscopes à centre NV. L'achromatisme, les performances de focalisation et l'ouverture numérique y sont des aspects cruciaux. Nous avons également souligné l'importance de la compacité de l'optique pour le développement d'un microscope à centre NV opérant sous un champ magnétique ultra-stable, où l'espace pour intégrer une optique est restreint.

Ce chapitre retrace notre processus de réflexion pour la conception de l'objectif, en l'occurrence l'usage de surfaces réfléchissantes coniques conjuguées pour réaliser une focalisation achromatique dans un agencement qui minimise, voire élimine, toute obstruction du champ de vision. Nous avons examiné la stratégie de développement adoptée pour optimiser les paramètres de ces surfaces, initialement à travers des simulations 2D pour des itérations rapides sur les designs, puis via des simulations plus avancées avec le logiciel commercial Zemax. Ces dernières ont affiné notre conception et simulé le comportement de l'objectif à travers des tests de performance standardisés en microscopie.

Ensuite, nous avons discuté d'une approche de correction pour les deux surfaces linéaires, qui a transformé une conception focalisant exclusivement sur un point en un système théoriquement capable de réaliser de l'imagerie directe de haute performance.

Malheureusement, le chapitre se conclut sur une note négative concernant les tests du premier prototype réel, qui s'est révélé bien en deçà des performances attendues. Cette déception est probablement due à une approche de gestion du projet de prototypage trop optimiste, fondée sur une confiance excessive dans notre capacité à matérialiser une conception exigeant une précision et une exactitude d'exécution extrêmes. Toutefois, ce dernier segment propose des pistes pour la poursuite du projet, incluant des optimisations de gestion et ouvre le débat sur la modification des définitions mêmes des surfaces réfléchissantes.



# RÉALISATION D'UN MICROSCOPE À CENTRES NV SOUS CHAMP MAGNÉTIQUE ULTRA-STABLE

---

## 4.1 Introduction

L'étude des structures magnétiques telles que les ondes de spin dans le YIG (grenat d'yttrium et de fer) nécessite l'application de champs magnétiques extérieurs d'une extrême stabilité. Le faible amortissement des résonances magnétiques dans le YIG implique un facteur de qualité très élevé, pouvant atteindre des valeurs proches de  $10^6$ . Cette propriété se traduit par une raie de résonance très étroite, imposant des exigences élevées en termes de résolution, d'exactitude et de stabilité des champs magnétiques et des fréquences radio appliquées, de l'ordre du ppm (partie par million).

Tandis que l'application de fréquences micro-ondes avec une telle précision peut être réalisée à l'aide d'instruments de mesure standard de haute qualité (tels que les modèles de HP/AGILENT/KEYSIGHT 5381A), atteindre ces niveaux de performance pour un champ magnétique est un défi bien plus complexe. Pour y parvenir, il est nécessaire de mesurer avec une grande précision le champ généré par un électro-aimant et d'utiliser cette mesure comme référence pour une boucle de rétroaction en circuit fermé. Les performances du système dépendent alors crucialement du capteur magnétique employé.

Pour atteindre une précision de l'ordre du ppm, tout en garantissant stabilité et exactitude, la méthode la plus efficace repose sur l'utilisation d'un capteur basé sur la résonance magnétique nucléaire (RMN) des protons. Le rapport gyromagnétique du proton est connu avec une précision traçable à mieux que  $10^{-6}$ . La mesure de l'amplitude du champ magnétique par une sonde RMN sert alors de paramètre de contrôle pour la boucle de rétroaction régulant l'alimentation de l'électro-aimant. Ces performances de stabilité du champ magnétique sont donc essentielles pour la mise en place de ce système de mesure, autour duquel tous les autres sous-systèmes et développements sont conçus et optimisés.

Ce chapitre mettra en avant le développement d'un microscope à centre NV conçu pour fonctionner dans l'entrefer d'un électroaimant ayant ce type de rétroaction. Il s'agit alors ici de la conception d'un système de microscopie NV ayant comme but final, mais pas unique, de réaliser la spectroscopie d'ondes de spin dans le YIG. Le choix technique d'utiliser ce type d'électroaimant découlant de ce but entraîne des contraintes notamment d'encombrement. L'une des conséquences les plus significatives de ces contraintes est le développement d'un nouveau type d'optique haute performance, dont la conception et les détails sont exposés dans le chapitre 3 de cette thèse. Dans ce chapitre, nous examinerons le système de mesure dans son ensemble, en détaillant les différents sous-systèmes nécessaires à son fonctionnement ainsi que les choix de conception associés. Cette approche globale permettra de comprendre comment chaque composant s'intègre dans l'architecture

du microscope et contribue à la réalisation des objectifs de recherche fixés, notamment en termes de précision et de performance.

## 4.2 Architecture du microscope à centre NV

Pour aborder de manière exhaustive le système de microscopie NV fonctionnant sous un champ magnétique ultra-stable, il est judicieux de le subdiviser en plusieurs composants majeurs. Le microscope proprement dit est constitué d'un tube d'un diamètre de 10 cm, qui renferme l'échantillon, la pointe AFM-NV, ainsi que les éléments de mesure et les actionneurs nécessaires, tous placés au plus près de la zone de mesure. L'électroaimant, qui permet la rotation et la génération d'un champ ultra-stable, est contrôlé par un système de rétroaction précis. Les équipements instrumentaux, quant à eux, se trouvent principalement dans une baie instrumentale de format 19 pouces et sont partagés avec le microscope NV sur table optique. Mais c'est aussi le cas pour l'ensemble laser/AOM et les photodiodes avalanche, qui sont situés sur la table optique. La connexion optique entre le tube du microscope, situé dans l'entrefer de l'électroaimant, et la table optique est assurée par deux fibres optiques : l'une dédiée au laser et l'autre à la détection de la fluorescence.

Cette structure modulaire du système de microscopie NV permet non seulement une optimisation des performances dans chaque sous-ensemble, mais aussi une flexibilité dans l'utilisation et l'intégration de composants communs entre différents types de microscopes NV, cf figure 50.



**Figure 50:** Positionnement des deux systèmes de microscopie à centre NV : le premier est installé dans une chambre noire sur une table optique, tandis que le second, destiné à l'utilisation sous champ ultra-stable, est placé dans l'entrefer d'un électro-aimant. Plusieurs composants/équipements sont partagés entre les deux microscopes.

### 4.2.1 Electroaimant

Au cœur de ce projet se trouve un électroaimant de pointe, caractérisé par un entrefer considérable de 10 cm et capable d'appliquer un champ magnétique allant jusqu'à 1.5 Tesla.

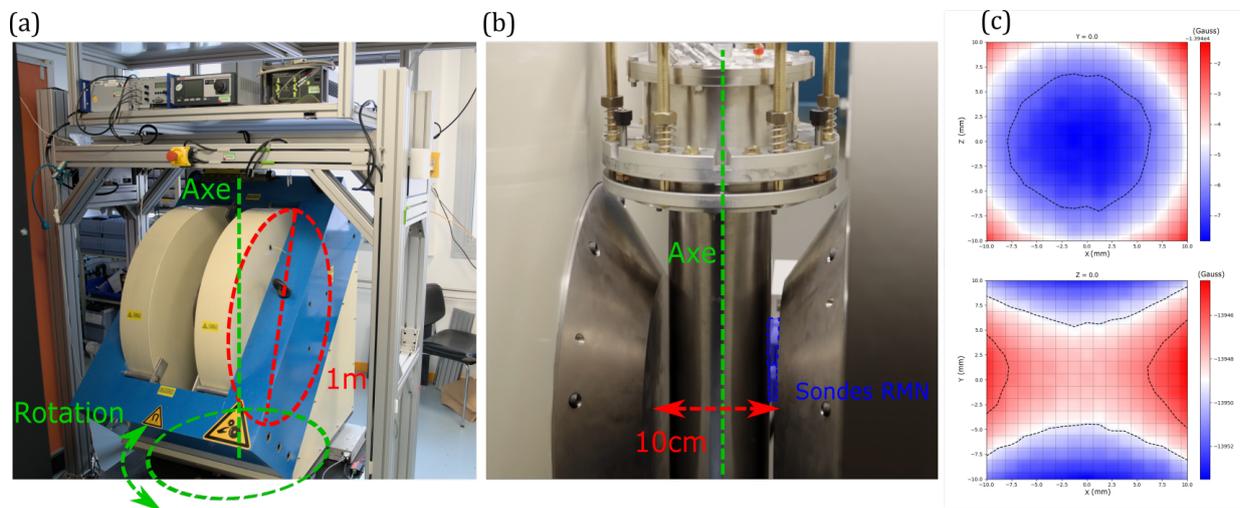
La conception de l'électroaimant, doté de pôles de 20cm de diamètre, assure une homogénéité remarquable du champ magnétique. Cette large surface des pôles permet de positionner la sonde RMN non pas au centre de l'entrefer, mais à proximité d'un des pôles de l'aimant. Pour obtenir des mesures RMN de haute qualité, il est préférable d'augmenter le volume de matière sondée, ce qui implique l'utilisation d'un capteur de dimensions macroscopiques. Ainsi, l'électroaimant, mesurant environ 1m de diamètre et pesant 3.5 tonnes, est conçu pour maintenir une zone d'homogénéité étendue.

Le signal provenant de la sonde RMN est traité par un système spécifique (CAYLAR NMR20), qui fournit des mesures précises du champ magnétique, non seulement via la sonde RMN mais aussi à l'aide de sondes à effet Hall situées dans le même boîtier. Pour simplifier, nous nous référons principalement à la sonde RMN, bien qu'en réalité, le système intègre deux types de sondes RMN pour différentes plages de champ, chacune couplée à une sonde Hall pour une mesure rapide du champ avant le verrouillage RMN.

Le contrôleur RMN offre une lecture directe et numérique (via Ethernet) du champ magnétique. Il dispose également d'une fonctionnalité produisant une tension analogique précise, correspondant à la valeur du champ mesuré. Cette tension est acheminée à l'alimentation de l'électroaimant via un câble coaxial, servant de consigne pour le courant à appliquer.

L'alimentation (CAYLAR MPU) est capable de générer un courant de  $\pm 210A$  et une tension de  $\pm 140V$ , soit manuellement, soit numériquement, soit en mode asservissement sur le champ magnétique.

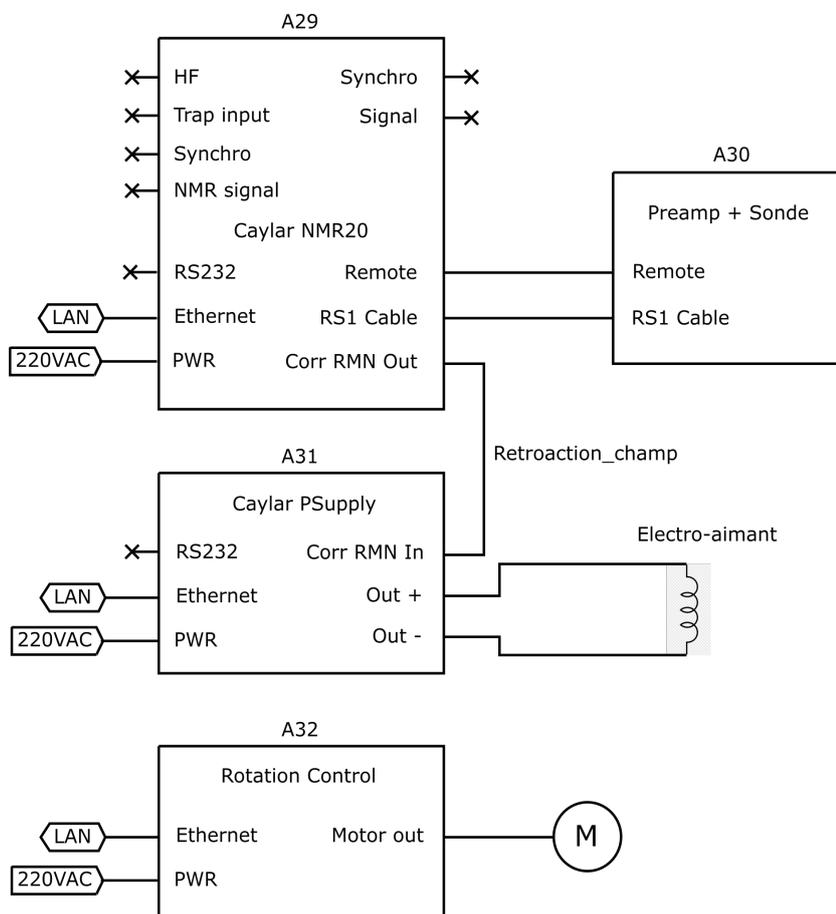
L'ensemble composé de l'électroaimant, des sondes et de l'alimentation permet l'application d'un champ magnétique avec une précision et une stabilité remarquables, atteignant une résolution de l'ordre du ppm (partie par million) sur de longues périodes.



**Figure 51:** (a) Grand électro-aimant de puissance monté sur un système de rotation motorisé pour un contrôle précis de l'angle (axe de rotation vertical) avec une résolution de 7 millidegrés. (b) Entrefer de l'électroaimant de 10 cm, montrant le tube du microscope en place et les sondes RMN de rétroaction en bleu. (c) Mesures de l'homogénéité du champ au centre de l'entrefer (positions de mesure) telles que fournies par le fabricant. Sur un volume de  $2 \times 2 \times 2 \text{ cm}^3$ , la variation de champ est de 0.5% pour une consigne au niveau de la sonde RMN de 1.4T.

Le second point important à prendre en considération vis à vis de la génération du champ magnétique et l'aspect orientation du champ par rapport au centre NV et par

rapport à l'échantillon. Pour permettre un réglage précis de ce paramètre, l'électroaimant est conçu avec une capacité de rotation autour de son axe vertical, permettant d'ajuster finement la direction du champ. Cette rotation est contrôlée par un système en boucle fermée, offrant une résolution de l'ordre du millidegré, cf figure 52.



**Figure 52:** Schéma instrumental des systèmes attenants à l'électro-aimant avec sa rétroaction RMN et la rotation.

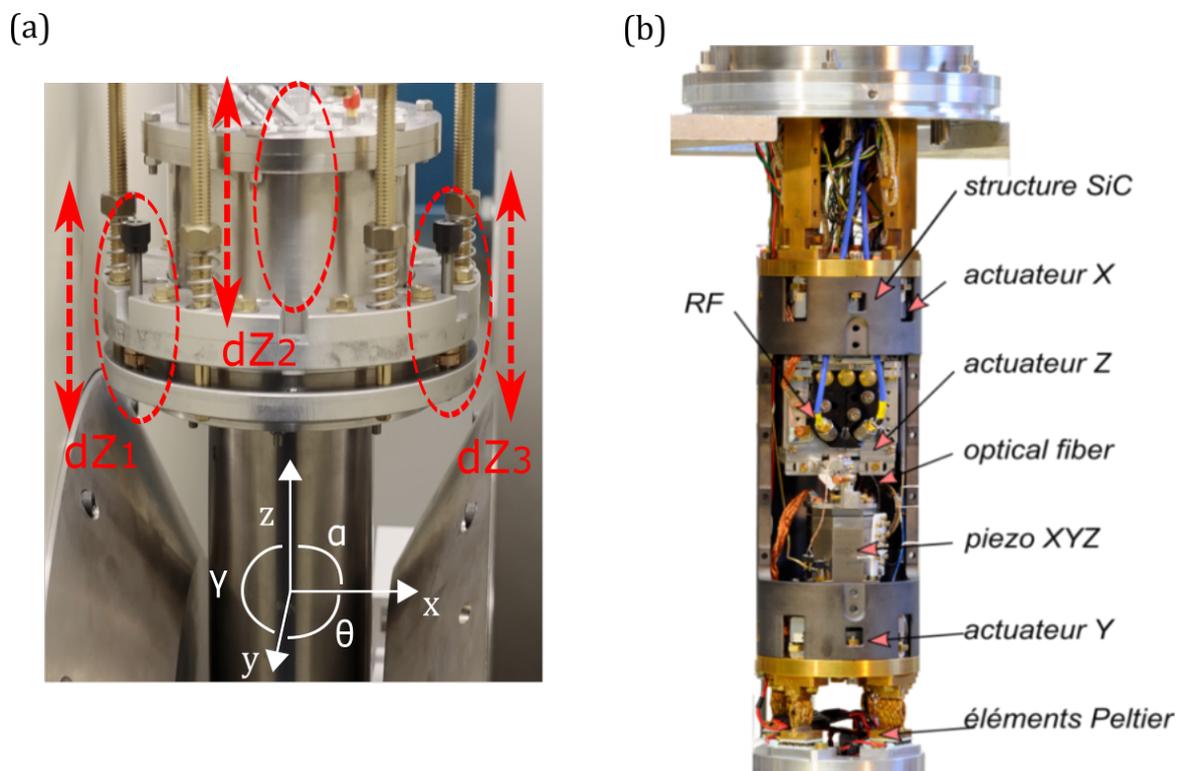
Cependant, il convient de souligner les risques associés à un aimant d'une telle puissance. Un champ magnétique de 1.5 Tesla sur un grand volume peut transformer des objets métalliques simples, comme une clé Allen, en projectiles dangereux. Les forces en jeu sont suffisamment importantes pour causer des blessures graves. Pour atténuer ces risques, plusieurs mesures de sécurité sont mises en place : une formation préalable des utilisateurs, un accès restreint à la salle d'expérience, et une limitation stricte des personnes autorisées à activer l'aimant. De plus, une zone d'exclusion clairement marquée est établie autour de l'électroaimant lorsqu'il est en fonctionnement.

Un autre risque majeur réside dans la rotation de l'aimant. La manœuvre d'un aimant de plus de 3.5 tonnes nécessite un moteur électrique puissant, et la proximité entre l'aimant et la structure de soutien du microscope (seulement 2 cm dans certaines orientations) peut entraîner des situations dangereuses. Afin de prévenir les risques d'écrasement, j'ai intégré à l'alimentation du moteur un système d'arrêt d'urgence en série. Ainsi, en cas de danger, une personne à proximité peut immédiatement stopper la rotation de l'aimant. De plus, j'ai volontairement limité la vitesse de rotation pour réduire le risque de mouvements brusques.

Bien que ces mesures de sécurité ne relèvent pas directement de la science ou de la technique, elles sont indispensables pour garantir la sécurité de tous ceux qui travaillent autour de cet équipement.

### 4.2.2 Microscope

Dans cette conception, le microscope doit alors être positionné dans l'entrefer de l'électro-aimant, et permettre d'acheminer les signaux nécessaires à l'excitation de l'échantillon, ainsi que les diverses fonctionnalités associées à la microscopie à centre NV. La conception du microscope exige une forme cylindrique dont le diamètre est adapté à l'espace disponible dans l'entrefer. Sa structure externe est fabriquée en acier inoxydable non magnétique, avec des traversées sur la partie supérieure destinées à accueillir les câbles et les fibres optiques.



**Figure 53:** (a) Installation du microscope dans l'entrefer : trois vis micrométriques ajustent précisément la position sur l'axe Z et les angles  $\alpha$  et  $\gamma$  du microscope par rapport à la direction du champ magnétique. L'angle  $\theta$  est réglable via la rotation motorisée. (b) Vue intérieure du microscope, présentant ses principales fonctionnalités : étages d'actionnement, structure en SiC, modules Peltier, capteurs de température et câbles micro-ondes. Les sous-systèmes optiques nécessaires à la magnétométrie NV ne sont pas encore installés.

La conception du microscope s'inspire d'un projet antérieur, qui nécessitait un vide poussé pour réaliser les mesures, un microscope à force de résonance magnétique (MRFM). Toutefois, pour notre application en magnétométrie NV, l'utilisation du vide n'est pas requise, simplifiant ainsi la conception, cf figure 53. En effet, dans un système MRFM, l'information de mesure est contenue dans la résonance mécanique d'un levier mécanique, et maximiser le facteur de qualité du résonateur implique l'utilisation d'un

vide poussé. Cependant, dans la microscopie à centre NV, le résonateur mécanique sert uniquement à déterminer la distance entre la pointe et l'échantillon et ne nécessite donc pas de vide pour fonctionner efficacement, l'information de mesure magnétique étant portée par le signal optique de fluorescence. Cette adaptation de conception nous permet de simplifier le système tout en conservant les fonctionnalités essentielles pour notre étude des centres NV.

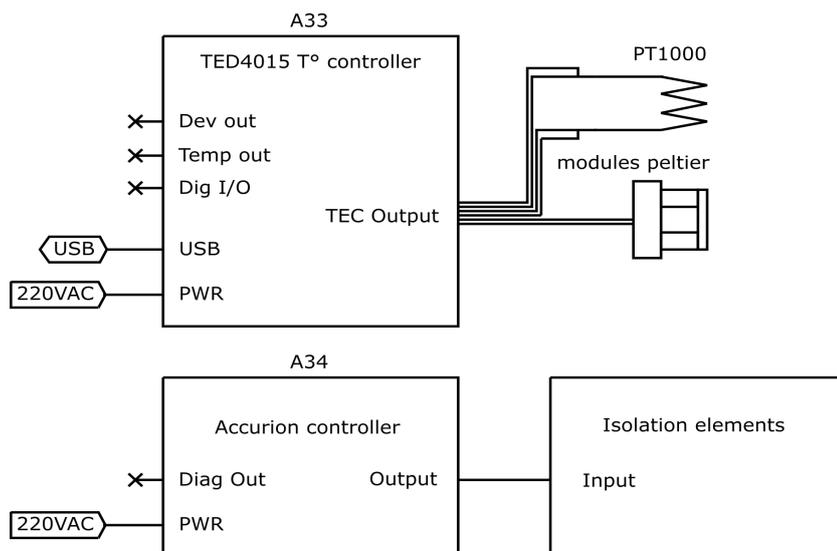
La structure supportant le microscope est conçue en carbure de silicium (SiC), matériau choisi pour ses propriétés exceptionnelles en termes de stabilité thermique. Reposant sur des modules Peltier, cette configuration est spécifiquement optimisée pour réguler la température du système de mesure. Dans les expériences de longue durée, la dérive thermique, entraînant des dilatations et altérant les positions relatives des composants du système de mesure, est un facteur limitant courant. La capacité de découplage thermique de cette conception, combinée à la régulation par les éléments Peltier, permet de minimiser efficacement ce problème. Cette régulation repose sur un ensemble de sondes de mesure de température PT1000 servant de capteurs pour une boucle de rétroaction basée sur un régulateur Thorlabs TED4015 contrôlant les éléments Peltier, cf figure 54.

Le choix du SiC est d'autant plus important qu'il possède un coefficient de dilatation thermique remarquablement faible, de l'ordre de  $4.6 \mu\text{m}/\text{m.K}$ . Cette valeur est deux fois moindre que celle du titane et cinq fois inférieure à celle de l'aluminium. Ce faible coefficient de dilatation garantit que même de légères variations de température n'affectent pas significativement la géométrie du système, préservant ainsi la précision des mesures. Mais le SiC, contrairement à d'autres céramiques, possède aussi un coefficient de conductivité thermique très important de  $110 \text{ W}/\text{mK}$  qui est même meilleur que certains des métaux utilisés dans les conceptions de ce type comme le titane  $16 \text{ W}/\text{mK}$ , mais moins bon que la référence du domaine qu'est le cuivre  $390 \text{ W}/\text{mK}$ . Ce dernier point permet une stabilisation thermique de la structure bien plus rapide et efficace du fait de la capacité du matériaux à transporter de la chaleur.

La conception a également été soigneusement pensée pour que le point de mesure soit autant que possible un centre de symétrie. Ainsi, en cas de variation de température globale, les dilatations dans différentes parties de la structure se produisent dans des sens opposés, se neutralisant mutuellement. Cette approche symétrique est une stratégie couramment employée dans la conception de systèmes de mesure de haute précision, pour contrer les effets potentiels de dilatation ou de contraction dues aux fluctuations de température.

Les composants responsables du déplacement de l'échantillon et de la pointe dans le microscope à centre NV sous champ ultra-stable incluent des moteurs pas à pas piézo de Steinmeyer et un scanner piézoélectrique 3 axes de la marque PI picocube. Cette sélection d'équipements, identique à celle utilisée dans le microscope sur table optique, assure une haute précision de déplacement et de balayage. Le scanner, en particulier, permet des balayages d'une grande précision dans un volume de  $5 \times 5 \times 5 \mu\text{m}^3$ , avec une capacité d'ajustement supplémentaire de  $5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ . Cette flexibilité s'étend également à la capacité de réaliser des balayages plus vastes par le recouvrement de plusieurs images suite au déplacement des moteurs pas à pas. Cette fonctionnalité augmente notablement la portée des analyses pouvant être effectuées par le microscope.

Pour compléter cette présentation du système, il est important de souligner que l'ensemble du tube du microscope est monté sur une structure isolée de l'électroaimant. Cette configuration permet non seulement la rotation de l'électroaimant, mais offre aussi une isolation du microscope contre les vibrations externes. L'emploi de systèmes d'isolation actifs, tels que l'Accurion Vario basic 60, est essentiel pour garantir la stabilité du microscope et la précision des mesures, en particulier dans un environnement où même de légères perturbations peuvent impacter significativement la qualité des données recueillies.



**Figure 54:** Schéma instrumental des systèmes de stabilisation en température et de vibration.

### 4.2.3 Contraintes associées

La conception du microscope et son circuit d'instrumentation ayant été précédemment définis et testés sur une table optique, il est désormais nécessaire d'adapter la section microscopique proprement dite aux exigences supplémentaires du microscope opérant sous un champ magnétique ultra-stable. La contrainte principale réside dans la limitation de l'espace disponible pour positionner efficacement les composants optiques, la pointe, l'antenne, et l'échantillon, une fois les divers modules actionneurs installés.

Le défi majeur est que l'axe optique de focalisation doit être aligné avec la normale à l'échantillon. En effet, la pointe AFM est alignée avec cette normale à l'échantillon, or pour focaliser sur la pointe il faut que l'optique soit elle aussi alignée avec cet axe. Il est à noter qu'avec l'utilisation d'une pointe d'orientation  $\langle 111 \rangle$  l'axe NV serait lui aussi aligné avec le champ  $B$  externe. Toutefois, les dimensions des actionneurs piézoélectriques et la nécessité de positionner l'échantillon au centre de l'entrefer de l'électroaimant limitent la taille de l'optique le long de l'axe optique à environ 3 – 4cm. Il convient également de prendre en compte la présence de la pointe et de l'antenne, ainsi qu'un étage supplémentaire de scanner piézoélectrique. Ce dernier est requis pour permettre le déplacement indépendant du système de focalisation par rapport à la pointe, facilitant ainsi le suivi (tracking) de la fluorescence, comme expliqué au chapitre 2.2.1.

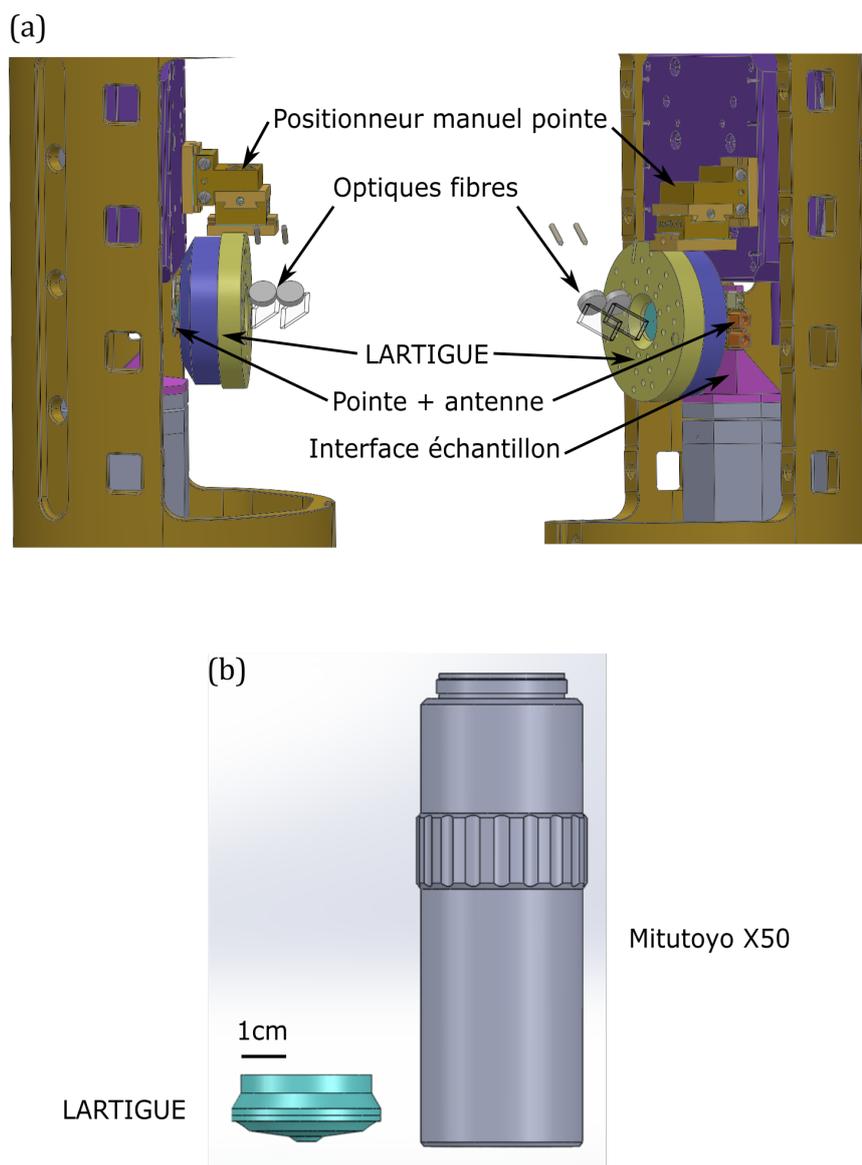
Cette conception requiert donc un réajustement précis des composants pour optimiser l'espace et assurer une performance maximale dans les conditions de champ magnétique ultra-stable, tout en maintenant l'alignement et la précision nécessaires pour les expériences de microscopie à centre NV.

## 4.3 Développements expérimentaux

Face aux contraintes liées à l'espace limité disponible au sein du microscope opérant sous champ magnétique ultra-stable, de nouvelles recherches et développements ont été nécessaires pour trouver des solutions adaptées. Au moment de la rédaction de ce rapport,

une partie significative des solutions envisagées se trouve encore au stade de la conception. Bien que certaines d'entre elles soient déjà opérationnelles, cette dernière section de la thèse se veut plus prospective, explorant les possibilités futures du microscope en champ ultra-stable. Il est à noter que certaines des solutions proposées dans cette section pourraient encore évoluer.

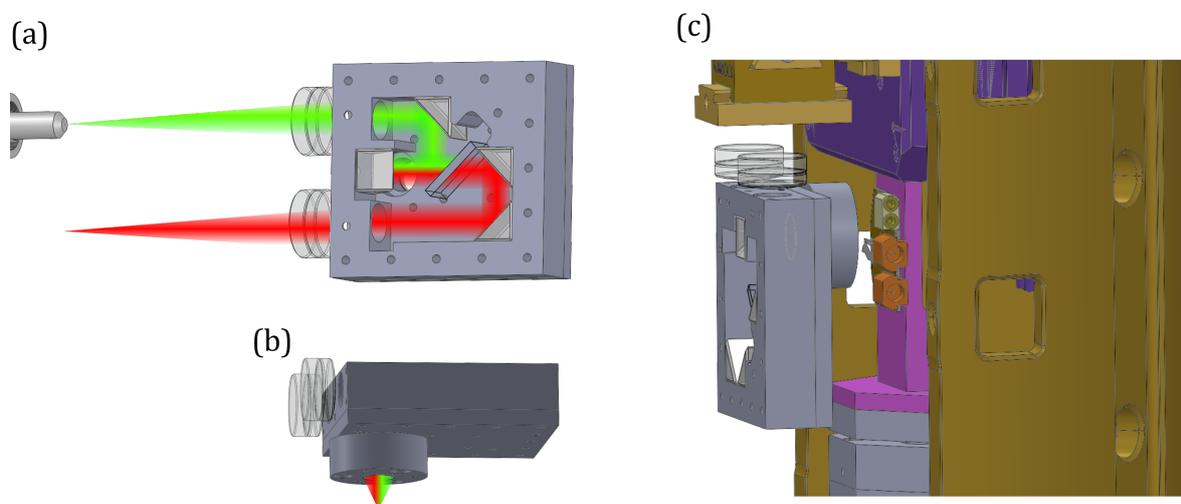
### 4.3.1 Systèmes optiques



**Figure 55:** (a) Positionnement de l'objectif LARTIGUE dans le microscope. Sont représentés les principaux sous-systèmes : LARTIGUE, positionneur manuel de la pointe AFM pour pouvoir régler grossièrement la position de la pointe AFM-NV par rapport au point focal de l'objectif, le porte pointe/antenne et ses connecteurs, et la position de l'échantillon. (b) Comparaison de l'encombrement entre le design LARTIGUE et un objectif Mitutoyo X50 modèle 378-814-4 commun dans la microscopie NV.

Le principal défi de ce projet réside dans le développement de solutions capables de focaliser un laser sur un seul centre NV et de capturer efficacement sa fluorescence dans un espace très confiné. Cela implique la conception d'un système optique précis et compact, adapté aux spécificités de la microscopie à centre NV, où la gestion de l'espace et la précision de focalisation sont cruciales, cf figure 55.

Le chapitre 3 détaille la conception d'un objectif catoptrique axiconique de haute performance, nommé LARTIGUE, développé en interne. Ce système, théoriquement, offre un achromatisme parfait au point focal et a été spécifiquement conçu pour répondre à nos exigences de compacité, afin de s'intégrer dans notre microscope. Néanmoins, à la date de rédaction de ce rapport, cette solution idéale n'est pas encore fonctionnelle. Le prototype unique existant ne répond pas aux performances attendues et, par conséquent, ne peut être utilisé dans notre microscope.



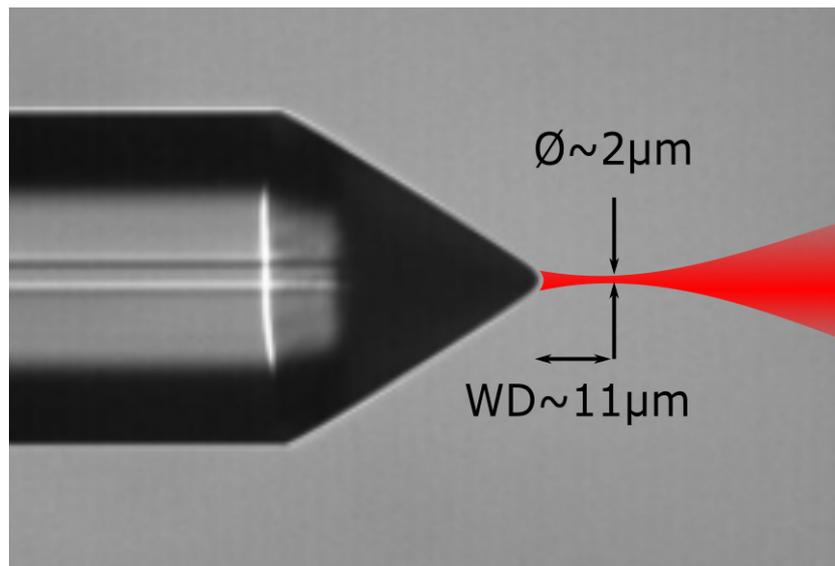
**Figure 56:** (a-b) *Concept de système de focalisation réfractif. Une lentille commune permet la focalisation des différentes longueurs d'ondes sur la pointe, puis un filtre dichroïque sépare les faisceaux qui sont alors collimatés dans deux fibres optiques.* (c) *Intégration du système dans le microscope.*

Parallèlement, une autre solution est en cours de développement, s'appuyant sur des lentilles réfractives commerciales pour les mesures AFM-NV, bien que ses performances soient inférieures à celles de LARTIGUE. Ce système utilise une lentille unique pour la focalisation du laser et la collecte de la fluorescence. Les deux faisceaux sont ensuite rapidement séparés par un filtre dichroïque avant d'être collimatés dans deux fibres optiques distinctes à l'aide de deux lentilles différentes, cf figure 56. Si les deux faisceaux étaient parfaitement à l'infini entre les lentilles, le chromatisme de la lentille commune empêcherait la focalisation à une distance identique pour le laser et la fluorescence. L'astuce réside donc dans la défocalisation d'un des faisceaux, ici celui de la fluorescence, au niveau de la lentille de collimation vers la fibre optique. Cette approche, bien que compensant le chromatisme de la lentille commune, est limitée à un spectre de longueur d'onde restreint. Étant donné que le spectre d'émission du centre NV s'étend d'environ 600 et 800nm, cette solution à trois lentilles, même avec des doublets achromatiques, ne capterait qu'une fraction du signal de fluorescence. Cela signifie des temps de mesure plus longs et un rapport signal sur bruit inférieur à celui qu'offrirait une solution idéale comme LARTIGUE.

Une autre piste envisagée pour surmonter les limitations d'espace est l'usage de fibres optiques lentillées, c'est-à-dire des fibres dont l'extrémité est façonnée pour agir comme une lentille réfractive, cf figure 57. Cette méthode présente plusieurs avantages notables :

1. Réduction du nombre d'éléments optiques nécessaires dans le microscope, simplifiant ainsi la conception globale.
2. Augmentation de la compacité du système, un atout crucial compte tenu des contraintes d'espace.
3. Le chromatisme de la fibre entraînera des variations de la distance focale. Cependant, étant donné que ces distances focales sont de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, l'impact absolu du chromatisme devrait être faible.

Toutefois, cette solution n'est pas sans défis. L'un des principaux problèmes réside dans le fait que le signal d'excitation et de détection passe par la même fibre optique. La fluorescence intrinsèque de la fibre pourrait être problématique si son spectre de longueur d'onde se superpose à celui de la fluorescence du centre NV. Bien que les défis liés au chromatisme paraissent gérables, voire acceptables, la question de la fluorescence propre de la fibre nécessite des tests approfondis.

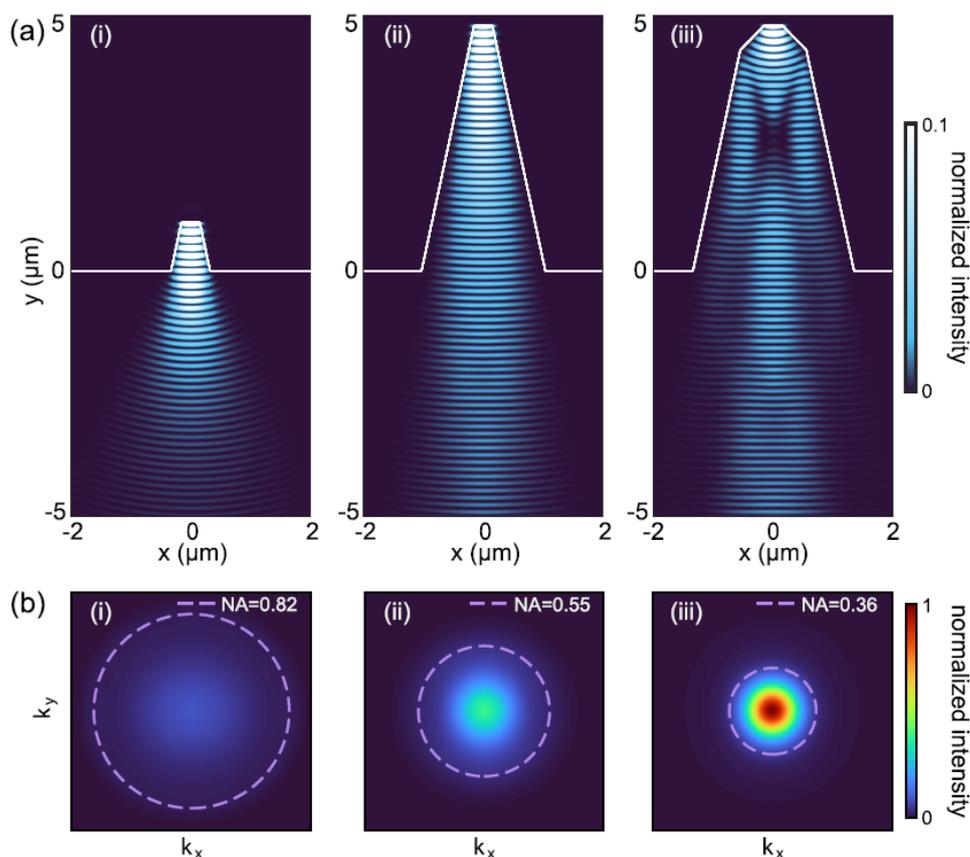


**Figure 57:** Les fibres lentillées, dotées d'interfaces spécifiquement formées, sont conçues pour focaliser la lumière à de très courtes distances. Leur conception réfractive entraîne un chromatisme relatif similaire à celui observé avec des lentilles de taille millimétrique. Toutefois, leur distance focale extrêmement réduite, typiquement de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, limite considérablement l'impact absolu de variations de cette distance focale. Cela rend le phénomène de chromatisme négligeable pour ces systèmes.

En conclusion de cette section dédiée à l'optique du microscope opérant sous champ magnétique ultra-stable, il est essentiel de souligner les avancées récentes concernant la conception des pointes AFM-NV. Des recherches de 2023 ont apporté des améliorations significatives sur la configuration de ces pointes en diamant, qui agissent comme des guides d'onde optiques. Ces progrès ont permis de concentrer de façon plus efficace la lumière le long de l'axe optique, ce qui réduit l'ouverture numérique nécessaire pour capter la fluorescence émise par les centres NV. Ainsi, des performances comparables à

celles obtenues avec une ouverture numérique de 0.55 (pointe génération 1) ou même 0.82 (pointe génération 2) sont désormais réalisables avec une ouverture de seulement 0.36, cf figure 58.

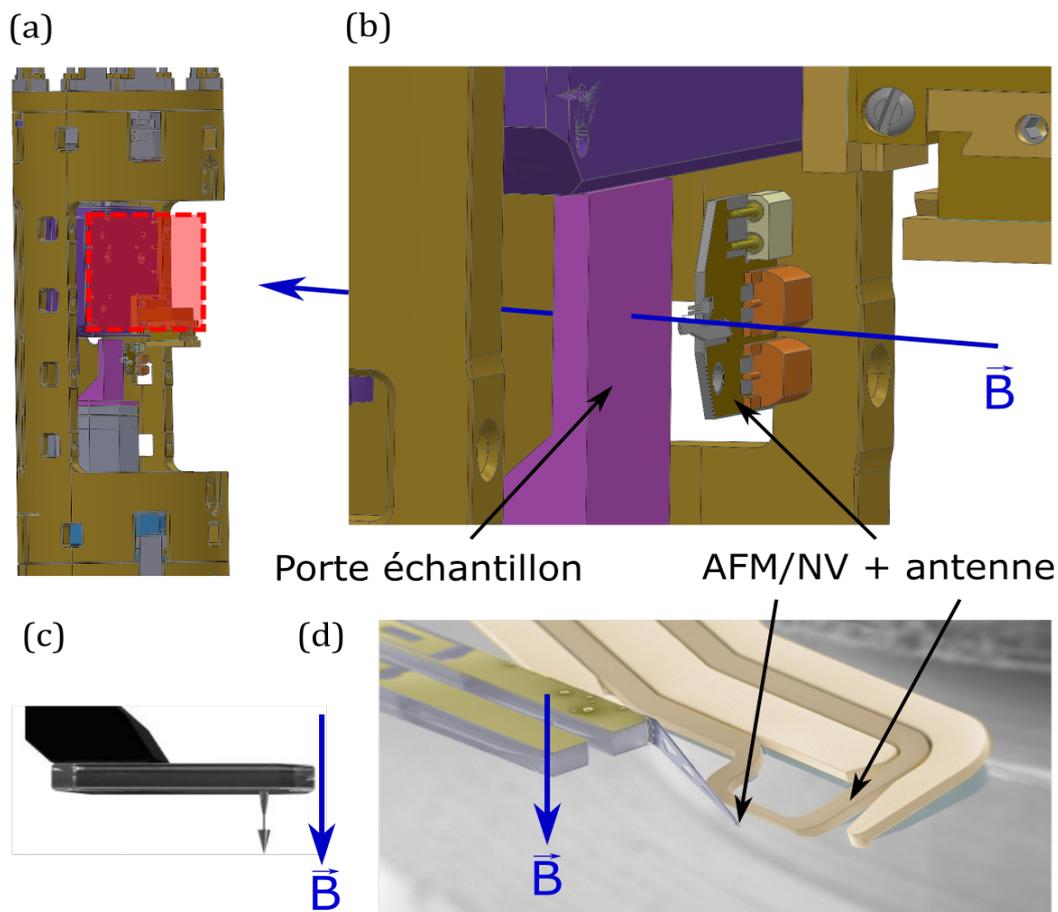
Cette évolution est fondamentale pour l'avenir du projet, quel que soit le système optique choisi – que ce soit le design LARTIGUE, le système à trois lentilles, ou l'utilisation de fibres optiques lentillées. Une ouverture numérique plus faible simplifie la conception optique et allège les contraintes de performances, permettant de rediriger ces exigences vers d'autres aspects du système.



**Figure 58:** (a) Des cônes uniques de différentes hauteurs et un multicône, tous conçus pour canaliser efficacement la lumière. Ces structures sont analysées en termes d'intensité optique à la facette du pilier avec des rayons de sommet de 150 nm. Trois cas sont simulés : (i) Un cône unique de 1  $\mu\text{m}$  de haut, (ii) Un cône unique de 5  $\mu\text{m}$  de haut, (iii) Un multicône de 5  $\mu\text{m}$  de haut. Pour ces simulations, les barres de couleur sont ajustées pour saturer à 10% de l'intensité maximale de chaque structure, améliorant ainsi la visibilité des détails de la propagation de la lumière. (b) L'intensité en champ lointain est également analysée, mettant en évidence la distribution angulaire de l'émission du couple pilier + NV pour ces différentes géométries. L'intensité est normalisée à celle de la structure multicône (MC) la plus performante. Les lignes pointillées violettes indiquent une ouverture numérique (NA) de 0.80, ce qui signifie que 80% de l'intensité est collectée pour une NA égale à 1. Cette analyse fournit des informations clés sur l'efficacité de la collection de lumière pour chaque conception, essentielle pour optimiser les systèmes de microscopie NV. Figures provenant de la publication originale [39].

### 4.3.2 Développements radiofréquences

Le microscope actuel intègre des passages de câble coaxiaux dédiés à la transmission des signaux radiofréquences vers le système centre NV-échantillon. Nous omettons ici les détails relatifs à l'acheminement des signaux de commande pour les moteurs et scanners piézoélectriques, car les contraintes techniques associées, liées principalement à leurs basses fréquences (maximum quelques dizaines de kHz), sont relativement simples à gérer. Cependant, une attention particulière doit être portée aux signaux de contrôle de haute tension (supérieurs à 100V), impliquant une sélection soignée des câbles et connecteurs appropriés.



**Figure 59:** (a)-(b) Modélisations 3D des structures requises pour le microscope AFM-NV sous champs ultrastables. L'échantillon est monté verticalement aligné avec l'axe de rotation de l'électroaimant et orthogonal avec le champ appliqué. (c) Pour réduire les désalignements entre le champ et l'axe NV, une orientation hors du plan (111), perpendiculaire au plan de l'échantillon, est privilégiée dans le choix des pointes. (d) La pointe AFM-NV est fixée sur un support intégrant également l'antenne micro-ondes, assurant une position relative stable. Ce dernier point est très important pour des mesures dépendantes de la puissance micro-ondes. Ces structures sont fournies par la société QZabre.

Concernant la transmission des signaux micro-ondes, l'aspect crucial est de maintenir une impédance constante de 50 Ohms sur l'ensemble du circuit. Cette exigence se traduit par le choix de câbles et connecteurs spécifiquement conçus à cet effet. Les micro-ondes doivent être acheminées tant vers l'antenne du centre NV que vers l'échantillon dans certains cas.

Pour l'antenne associée au centre NV, une approche similaire à celle du microscope sur table optique pourrait être envisagée, avec une boucle montée sur un circuit imprimé haute fréquence indépendant de la pointe AFM-NV. Cependant, cette configuration nécessiterait trois degrés de liberté supplémentaires pour ajuster la position relative de la pointe par rapport à l'antenne, ajoutant une complexité indésirable au projet. La solution adoptée consiste en le développement d'une pointe AFM-NV intégrant l'antenne sur une même plateforme, comme l'illustre la figure 59.

Cette innovation, proposée par l'entreprise QZabre, offre plusieurs avantages. Elle élimine le besoin de degrés de liberté supplémentaires et fixe la distance entre le centre NV et l'antenne, un paramètre crucial pour les mesures NV dépendant de la puissance micro-ondes. Toutefois, un inconvénient notable réside dans le coût élevé de ces dispositifs spécialisés, qui doivent être acquis auprès d'un fournisseur externe.

Pour l'acheminement des micro-ondes vers l'échantillon, nous avons adopté une approche similaire à celle utilisée pour le porte-échantillon du système sur table optique. Ce porte-échantillon est conçu à partir d'un circuit imprimé en céramique, un matériau choisi pour ses propriétés favorables à l'optimisation de l'impédance à haute fréquence et pour sa faible dilatation thermique par rapport aux substrats FR4 standard.

Étant donné que l'échantillon doit être déplacé dans l'espace par le scanner, il est essentiel que les câbles et les connecteurs destinés aux micro-ondes soient aussi flexibles et légers que possible. Pour cela, nous utilisons des connecteurs coaxiaux de type UF.1, qui offrent de bonnes performances jusqu'à 6GHz, associés à des câbles fins RG178. L'échantillon est ensuite fixé sur le circuit imprimé, et les connexions sont réalisées par du wire bonding, en s'efforçant de garder les trajets aussi courts que possible afin de minimiser les pertes de signal et les interférences potentielles.

### 4.3.3 Développements mécaniques

Une partie importante des développements mécaniques à ce stade est la conception des pièces d'interfaces pour fixer les différents sous-systèmes entre eux. Deux tâches majeures se démarquent cependant : le positionnement manuel grossier de la pointe par rapport à l'objectif et la capacité à ajuster finement ce dernier pour aligner précisément le centre NV avec le point focal.

Indépendamment de la solution optique retenue (LARTIGUE, système à trois lentilles ou fibre optique), les mécanismes de positionnement manuel et les piézos pour le suivi ("tracking") de la fluorescence restent similaires.

Pour le positionnement manuel de la pointe, nous avons opté pour un actionneur manuel amagnétique commercial, offrant une extrême compacité. Le positionneur 3 axes MDE269 d'Eliot Scientific, choisi pour cette tâche, offre une course de 3 mm sur chaque axe avec une précision micrométrique. Cette précision est cruciale pour positionner la pointe à proximité immédiate du point focal de l'optique.

Pour le réglage fin et le suivi en temps réel de la fluorescence, un actionneur piézo en déformation est nécessaire. Ce qui est important ici c'est la plage de déplacement disponible. Par retour d'expérience du microscope sur table optique, une course de 50µm sur chaque axe est jugée suffisante et confortable. Il faut donc choisir ou concevoir une solution technique permettant une course de cet ordre.

Cependant, la complexité de cette tâche varie selon la solution optique choisie. Par exemple, pour une optique de focalisation via fibre optique, un tube segmenté pourrait être envisagé, bien que cette solution pose des problèmes d'orthogonalité. Idéalement, un scanner piézo XYZ orthonormé, tel que l'ANSxyz50 d'Attocube ou le TRITOR 38 de piezosystemjena, serait préférable pour répondre à nos besoins de déplacement tout en minimisant l'encombrement. Néanmoins, ces scanners peuvent parfois s'avérer trop

volumineux pour une intégration dans notre microscope.

Une alternative serait d'imiter le comportement d'un tube segmenté en utilisant trois éléments piézos distincts pour déplacer l'objectif en  $Z$ ,  $\theta$ , et  $\phi$ , et de reconstruire virtuellement le repère XYZ via le contrôle des piézos. Cette solution, plus compacte, offre également une plus grande flexibilité pour adapter le système de positionnement à nos contraintes d'espace mais réclame bien plus d'effort dans son développement.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exploré les divers composants qui viennent enrichir le développement du microscope NV sur table optique, en vue de créer un second microscope adapté pour fonctionner sous un champ ultra-stable dans l'entrefer d'un électro-aimant. Bien que certains des éléments discutés aient été conçus, fabriqués et testés, la majorité en sont encore au stade du développement, positionnant ce chapitre dans une perspective d'avenir pour le système.

Certains développements électroniques spécifiques communs aux deux microscopes NV, sur table optique et dans l'entrefer de l'électro-aimant, n'ont pas été abordés dans cette section. Cependant le détail de leurs conceptions, réalisations et fonctionnements sont disponibles dans les annexes.

Nous avons d'abord examiné la motivation sous-jacente à ce projet, à savoir la réalisation de spectroscopie d'ondes de spin dans le YIG, et les performances en termes de stabilité du champ magnétique que cela implique. Nous avons ensuite détaillé le choix technique d'utiliser un électro-aimant asservi en champ par des sondes RMN pour générer un champ magnétique. Ce choix présente l'avantage de générer un champ ultra-stable avec une précision de l'ordre du ppm et permet également d'ajuster l'orientation relative du champ avec une résolution de l'ordre du millidegré.

Les contraintes découlant de cette sélection influent directement sur la conception du microscope, en termes de forme et de taille, pour qu'il puisse être positionné dans l'entrefer de l'électro-aimant. Ces contraintes imposent des limitations significatives sur tous les éléments internes du microscope, notamment sur l'optique, les circuits de radiofréquence et les divers mécanismes de réglage.

Le design global a été pensé pour maximiser la stabilité du positionnement, grâce à une sélection minutieuse des actionneurs piézo, des matériaux et par l'intégration d'une stabilisation thermique de l'ensemble. Actuellement, la finalisation du système est conditionnée par les défis majeurs relatifs à l'optique. Il est donc prévu que des développements significatifs dans un avenir proche puissent lever ces obstacles, permettant ainsi la mise en fonctionnement complète du système.

# CONCLUSION

---

## 5.1 Conclusion générale

Cette thèse aborde le développement d'un microscope à centre NV, conçu pour effectuer de la spectroscopie d'ondes de spin. Nous avons commencé par contextualiser les propriétés physiques des centres NV, en mettant l'accent sur leur utilisation en magnétométrie. Cela a inclus une exploration de la structure électronique du défaut Azote-Lacune et de certaines de ses propriétés photophysiques clés. Ensuite, nous avons établi un lien entre le comportement des NV et des méthodologies les exploitant pour réaliser des mesures de magnétométrie sur un échantillon tiers, en observant la fluorescence des NV.

Nous avons décomposé ces approches en magnétométrie de champs statiques en fonction des propriétés magnétiques des échantillons, notamment l'intensité de leur champ de fuite. Dans tous les cas, la grandeur mesurée est le taux de fluorescence relatif du centre NV, c'est-à-dire sa variation.

De nombreux protocoles de cette thèse se concentrent sur la mise en évidence des spectres de résonance paramagnétique électronique des centres NV, caractérisés par des pics de diminution relative de leur fluorescence à certaines fréquences. Dans un champ magnétique nul, la résonance du centre NV se manifeste par un pic unique à une fréquence voisine de 2.87GHz. Cependant, l'application d'un champ magnétique extérieur sur le centre NV entraîne, via l'effet Zeeman, la levée de dégénérescence du NV, permettant l'observation de deux transitions distinctes. Ces transitions se traduisent par deux pics d'extinction de fluorescence, dont la position en fréquence varie en fonction de l'amplitude et de l'orientation du champ par rapport à l'axe du NV.

Dans le cas d'échantillons présentant des champs de fuite inférieurs à 5mT, il est possible d'approximer les spectres de résonance paramagnétique électronique des centres NV comme étant ceux d'un champ aligné avec l'axe du NV. Cette approximation conduit à une réponse linéaire des déplacements de fréquence des pics RPE par rapport à l'amplitude du champ magnétique  $B$  émanant de l'échantillon. En d'autres termes, les deux pics de résonance s'éloignent symétriquement de la fréquence RPE à champ nul. Cette symétrie permet de déduire la valeur du champ magnétique en analysant seulement l'un des deux pics de résonance.

Pour des champs compris entre 5 et 20mT, l'approximation de symétrie des spectres RPE des centres NV n'est plus valide. Dans ce cas, il est nécessaire de considérer la position en fréquence des deux pics de résonance pour reconstruire les caractéristiques du champ magnétique provenant de l'échantillon, c'est-à-dire son amplitude et son orientation relative par rapport à l'axe du centre NV.

Lorsque le champ magnétique dépasse 20mT, les propriétés optiques des centres NV ne permettent pas nécessairement d'obtenir des spectres RPE clairs. À des niveaux de champ élevés, le contraste des pics RPE devient indiscernable. Toutefois, la fluorescence des centres NV, indépendamment de toute résonance, varie également selon l'orientation du champ par rapport à l'axe NV. Ainsi, on peut mesurer directement la fluorescence des centres NV, sans application de micro-ondes, comme indicateur de l'alignement du champ intense avec l'axe NV. La fluorescence est maximale lorsque le champ est aligné avec l'axe

NV, et minimale lorsqu'il est orthogonal.

Dans ce chapitre, nous avons également exploré les principales propriétés temporelles des centres NV et les protocoles nécessaires pour accéder à ces informations.

Le second chapitre s'est concentré sur le développement d'un microscope à centre NV pour table optique. Cette étude a permis de relier les propriétés physiques des centres NV, présentées dans le premier chapitre, à des applications pratiques. Ce chapitre se focalise sur l'architecture de ce système de mesure et sur le processus de développement, en tenant compte des besoins spécifiques liés à l'utilisation de centres NV uniques positionnés dans des pointes de microscope à force atomique (AFM). L'objectif principal de ce développement était de maîtriser la technique de mesure NV à travers la création de systèmes et de protocoles adéquats, en préparation d'un second microscope destiné à fonctionner sous un champ magnétique ultra-stable, sujet que nous traiterons dans le chapitre 4. Nous débutons par une présentation des composants optiques et micro-ondes nécessaires à l'étude des centres NV, en détaillant les choix techniques et les protocoles développés. Nous discutons ensuite de la manière d'appliquer un champ magnétique externe et contrôlé sur le centre NV, en utilisant un aimant permanent.

Il est essentiel d'expliquer également la conception de l'AFM, en mettant en lumière les contraintes et les développements en résultant. Nous concluons cette partie par une analyse de l'ensemble instrumental composant ce système, et la méthodologie mise en place pour synchroniser les différentes mesures effectuées simultanément. Ainsi, nous suivons le processus nécessaire pour étudier les centres NV, ainsi que pour réaliser des cartographies de champs magnétiques de fuite à partir d'un échantillon, en utilisant un centre NV unique intégré dans une pointe AFM-NV.

Nous terminerons cette section par des mesures préliminaires visant à démontrer la fonctionnalité et la fiabilité du système de mesure. Ces tests incluent l'imagerie par extinction de fluorescence d'un morceau de disque dur et d'un film de grenat d'yttrium et de fer (YIG). Ces expériences sont cruciales pour valider l'efficacité de notre approche et sa capacité à produire des résultats reproductibles. Le troisième chapitre de cette thèse s'est consacré à la description du développement d'une nouvelle catégorie d'optique catoptrique pour la focalisation et l'imagerie achromatique. Ce travail visait à répondre au besoin d'une optique compacte et performante pour le microscope NV opérant sous un champ magnétique ultra-stable. Nous avons exploré les différentes techniques optiques disponibles, mettant en lumière l'absence d'une technologie capable de fournir une focalisation compacte, achromatique et sans obstruction centrale du champ de vision.

Notre solution, baptisée LARTIGUE, a été conçue pour combler cette lacune. Nous avons examiné en détail les propriétés de ce système optique et la philosophie sous-jacente à sa conception. Cette exploration a inclus les principes de base du design, ainsi que les stratégies d'optimisation pour élargir les possibilités d'imagerie directe. Nous avons constaté que, malgré des performances théoriques remarquables, le premier prototype a produit des résultats bien en deçà des attentes. Cette expérience souligne la nécessité d'adopter une approche différente pour la réalisation matérielle de ce projet afin d'assurer son succès futur.

Dans le dernier chapitre de cette thèse, nous avons abordé la conception d'un microscope à centre NV destiné à fonctionner sous un champ magnétique ultra-stable, visant à réaliser des études détaillées des résonances dans le YIG à l'aide des centres NV. À l'instar du chapitre dédié au microscope NV sur table optique, nous avons examiné les propriétés physiques de l'échantillon à mesurer, qui ont guidé la conception du système de mesure.

Nous avons mis en lumière que les exigences de stabilité du champ magnétique externe nécessaires pour l'étude du YIG, caractérisé par un faible amortissement magnétique, imposent l'utilisation d'un électro-aimant résistif de grande taille, assorti d'un système de rétroaction. Ce choix technique a introduit plusieurs contraintes dans la conception du microscope et de ses systèmes et sous-systèmes.

Les aspects les plus complexes concernent la conception du cœur du microscope à centre NV lui-même, notamment l'optique de focalisation, les systèmes micro-ondes, et certains actionneurs spécifiques adaptés aux protocoles NV. Ces éléments jouent un rôle crucial dans la maximisation de la collecte de la fluorescence du centre NV unique en suivant sa position relative dans l'espace par rapport au système de focalisation. Cette partie du chapitre, tout en faisant référence au développement de LARTIGUE, envisage également d'autres voies alternatives pour surmonter les défis optiques.

Ce rapport de thèse met en avant une démarche expérimentale centrée sur la microscopie NV, ancrée dans la compréhension approfondie de la physique des centres NV et des échantillons analysés. L'objectif est de structurer les développements en accord avec ces connaissances fondamentales. Cette thèse vise à être didactique, illustrant la démarche de conception méthodique et réfléchie adoptée pour ce projet.

L'approche de rédaction de ce rapport est conçue pour refléter fidèlement la manière dont j'ai abordé et développé divers aspects de ma recherche doctorale. Elle incarne l'interaction entre théorie et pratique, soulignant l'importance de fonder les développements expérimentaux sur des principes physiques solides.

Mon travail de thèse a intégré une diversité de domaines, tels que le magnétisme, l'optique, l'instrumentation, l'électronique, la programmation/algorithmique et la mécanique. Cette interdisciplinarité n'a pas toujours conduit à un chemin direct, contrairement à ce que pourrait suggérer ce rapport.

Le processus a souvent commencé par une définition claire du problème, suivie d'une revue approfondie des solutions existantes pour identifier la meilleure approche à adopter. Un aspect crucial de ce travail a été la nécessité de remettre en question les approches standard lorsque celles-ci ne répondaient pas entièrement à nos besoins. Un exemple marquant a été le développement de l'optique LARTIGUE, initialement non prévu. Face au besoin d'une optique à la fois performante et compacte, ce nouveau concept a progressivement pris une place centrale dans ma recherche.

Un aspect inévitable de ce parcours a été la multiplicité des essais et erreurs. L'aspect le plus crucial a été la capacité à reconnaître ces erreurs, à prendre du recul et, si possible, à consulter des spécialistes du domaine. Cette démarche visait à mettre en perspective nos idées et hypothèses avec leur expertise, afin d'éviter de persister dans des voies sans issue. Cette approche réflexive et collaborative a été un pilier fondamental de ma thèse.

Pour conclure cette section dédiée au travail expérimental en magnétométrie NV, il est essentiel de souligner que bien que certains développements restent à finaliser pour que les deux instruments - le microscope sur table optique et celui conçu pour fonctionner dans l'entrefer de l'électro-aimant - soient pleinement opérationnels, l'aboutissement de ces projets semble proche. Les tâches restantes se concentrent principalement sur des aspects logiciels pour le microscope sur table et sur des améliorations optiques pour le microscope sous champ ultra-stable.

Dans une perspective plus générale concernant les techniques de magnétométrie NV, je suis convaincu que nous vivons une époque particulièrement fertile en développements innovants. De nouvelles approches et avancées, extrêmement prometteuses tant pour notre projet spécifique que pour la discipline dans son ensemble, sont actuellement en cours. Ces progrès augurent un avenir riche et diversifié pour la communauté NV, ainsi que pour les domaines connexes tels que le magnétisme, la biologie, la chimie, où les centres NV trouvent des applications potentiellement révolutionnaires.

## 5.2 Contributions personnelles

Au cours de cette thèse, j'ai acquis des compétences fondamentales en recherche, notamment dans la compréhension de phénomènes physiques complexes, la conception d'optiques,

de mécaniques de précision, ainsi que dans le développement de systèmes instrumentaux et électroniques.

Ma contribution principale durant cette thèse a été la conception et la mise en œuvre des systèmes de microscopie NV et du dispositif optique LARTIGUE. Ces travaux représentent le cœur de mon engagement et de mes efforts durant cette période.

J'ai bénéficié d'une formation approfondie en physique des centres NV et en optique, largement dispensée par mon co-directeur de thèse, le Dr Benjamin Pigeau. Les connaissances générales en instrumentation de pointe et en programmation de logiciels de simulation m'ont été transmises par mon directeur de thèse, le Dr Olivier Klein.

Il est important de souligner que, compte tenu de la technicité et de l'aspect conception instrumentale du projet, l'assistance des équipes techniques a été cruciale pour la réussite du projet. M. Nicolas Mollard et M. Eyub YILDIZ, experts respectivement en mécanique et en électronique/instrumentation, m'ont considérablement aidé dans la conception et la réalisation de nombreux équipements, prenant parfois en charge l'intégralité du processus. Mme Isabelle Joumard, responsable de l'instrumentation du laboratoire, m'a également beaucoup soutenu dans la gestion de ces aspects.

Enfin, je tiens à rendre hommage au Dr Vladimir Naletov, qui a été un pilier technique et scientifique au début de ce projet et un collègue exceptionnel. Malheureusement, en raison de l'évolution du contexte géopolitique international depuis 2022, il n'a pas pu rejoindre à nouveau le projet. Sa non-participation constitue une perte significative pour tous.

À ce jour, un résultat majeur de ce travail de thèse a été formalisé et diffusé sous forme de publication :

- Un brevet international pour la version originale de l'objectif LARTIGUE, qui ne possédait pas encore la capacité d'imagerie. *SYSTEME OPTIQUE DE FOCALISATION ET DE COLLECTION* [43], Dans ce brevet, je suis cité comme l'inventeur principal et j'ai activement participé à sa rédaction.

Travaux en Cours de Soumission :

- Un article scientifique détaillant la conception et l'optimisation de l'objectif LARTIGUE, intitulé "*Compact design of reflective objective for super-resolution microscopy*", aJ'ai contribué à cet article en termes de conception, dimensionnement, simulation, analyse et rédaction.
- Un second brevet portant sur l'évolution de l'objectif LARTIGUE, y compris les améliorations apportées pour étendre ses fonctionnalités à l'imagerie directe. Je suis également nommé en tant qu'inventeur principal sur ce brevet et ai contribué à sa rédaction.

### 5.3 Remarques sur les outils numériques

La réalisation de cette thèse a été grandement facilitée par l'utilisation de divers logiciels et bibliothèques, tant open-source que propriétaires. Parmi eux, les bibliothèques Python Numpy et Scipy ont été essentielles pour les calculs scientifiques, tandis que Kicad a joué un rôle crucial dans la conception de circuits électroniques et micro-ondes. Pour la création de visuels, des outils comme Inkscape, GIMP, Blender et Gwyddion ont été employés, tandis que JabRef a permis une gestion efficace de la bibliographie. L'apport

des programmeurs bénévoles derrière ces outils open-source est inestimable et a largement contribué à la réussite de ce travail de thèse.

En parallèle, l'utilisation de logiciels propriétaires comme Solidworks a été indispensable pour la conception mécanique des différents éléments des microscopes, et Zemax a été utilisé pour les simulations numériques en optique.

De manière significative, les modèles d'intelligence artificielle GPT3, 3.5 et 4 ont aussi été exploités. Ils ont servi d'assistance dans la programmation, spécialement dans la structuration des logiciels et des scripts Python pour le contrôle de l'instrumentation, ainsi que dans la création graphique. Ces modèles ont également été utiles pour la correction orthographique, la reformulation sémantique et l'amélioration de ce manuscrit. Il est important de souligner que ces outils d'intelligence artificielle n'ont pas été utilisés pour générer le contenu de base, mais pour affiner et améliorer le texte que j'avais préalablement produit.

les circuits conçus et les mesures réalisées dessus architecture complete du système de mesure architecture complete du soft de control calcul du coût carbone de cette thèse références aux outils utilisés (Zemax, Solidworks, Freecad, Kicad, lib ppython, GPT etc.)



# SYSTÈMES DE MESURES DÉVELOPPÉS

---

Dans cette annexe, nous décrivons les différents équipements électroniques de mesures développés en interne pour la mise en oeuvre des microscopes à centre NV. Nous illustrerons ici divers équipements remplissant des fonctions spécifiques n'étant pas nécessairement disponibles dans le commerce, ou ayant des spécificités et gamme de fonctionnement précises à nos conceptions.

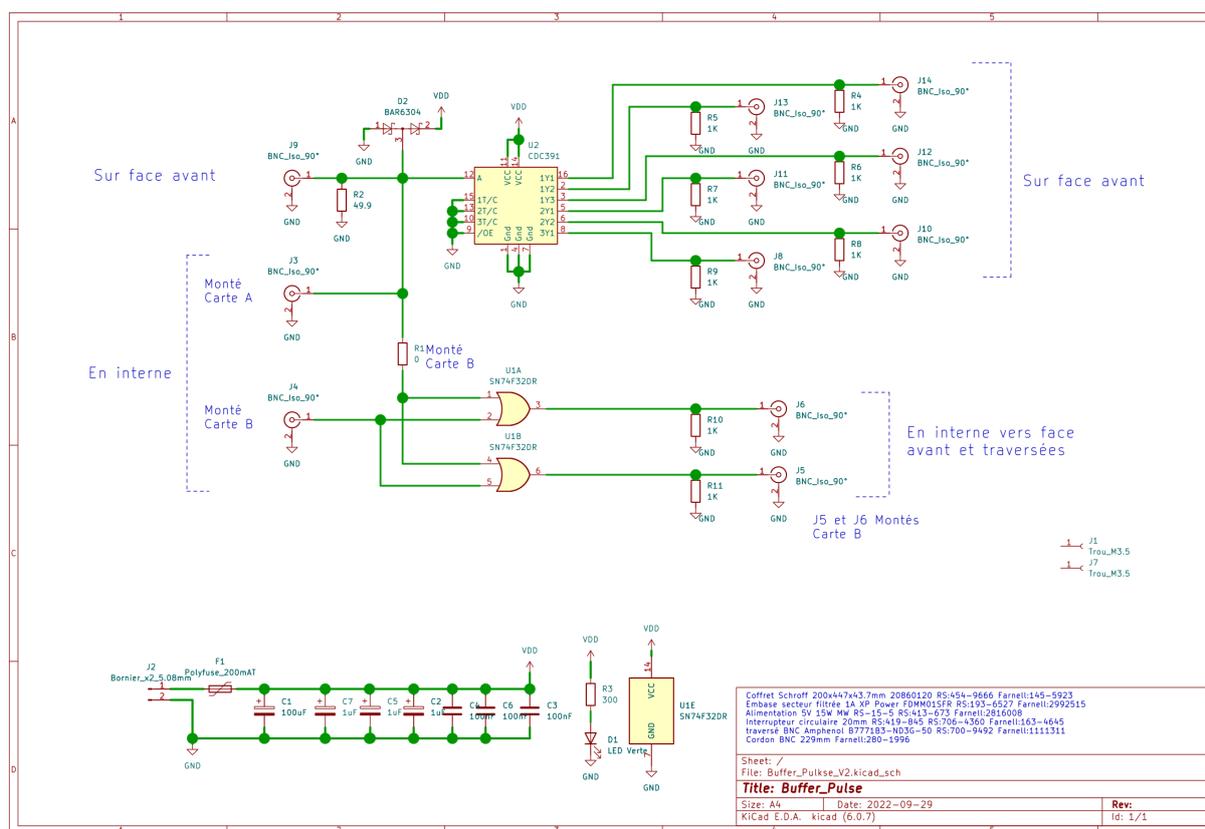
J'ai réalisé l'ensemble de ces systèmes avec à minima l'aide et les retours critiques de notre expert interne Eyub Yildiz, qui a pour certains systèmes (dernière version de l'amplificateur de distribution, les alimentations multirails et le boxcar averager) pris l'intégralité du processus de conception et réalisation. Ce point est important, car sans son expertise, le projet se serait non seulement plus lentement développé, mais certaines fonctions de mesures auraient été impossibles.

## A.1 Amplificateur de distribution

La stratégie adoptée pour les équipements de mesure consiste en une séparation spécifique et distincte des fonctions, permettant une duplication efficace des signaux de fluorescence. Cette approche, choisie pour sa simplicité et stabilité logicielle, implique l'utilisation de systèmes de mesure semi-autonomes pour chaque application. Par exemple, la fonction de balayage de la fluorescence en fonction de la position relative entre la pointe et l'objectif est assurée par une carte DAQ. Cette carte, capable de contrôler la position de l'objectif via trois de ses sorties analogiques et un compteur, est dédiée exclusivement à cette tâche ainsi qu'au suivi du maximum de fluorescence, fonctionnant en continu durant divers protocoles.

Ainsi, il devient nécessaire de rendre le signal de fluorescence provenant des photodiodes accessible à cette fonction et aux autres protocoles. Pour cela, un amplificateur de distribution a été conçu, capable de dupliquer le signal de chaque photodiode en six sorties simultanées pour une utilisation parallèle sur plusieurs équipements. Cette conception s'inspire des travaux de Benjamin Pigeau et Olivier Arcizet de l'Institut Néel.

Eyub YILDIZ, ingénieur à SPINTEC, a développé et construit ce système en se basant sur des circuits standards adaptés à la distribution d'impulsions d'horloge TTL. Un ajout notable est l'incorporation d'une porte logique OU, permettant la sommation des signaux des deux photodiodes sur deux sorties dédiées. Celles-ci sont réservées aux mesures sensibles, telles que les protocoles pulsés et les mesures rapides de spectres via PLL.



**Figure 60:** Schéma électronique de l'amplificateur de distribution. Ce système permet de distribuer le signal des photodiodes vers six sorties pour chaque photodiode. Une section du circuit utilise des portes logiques OU permettant de combiner les signaux des deux photodiodes afin de maximiser le signal pour les mesures rapides sur centre NV.

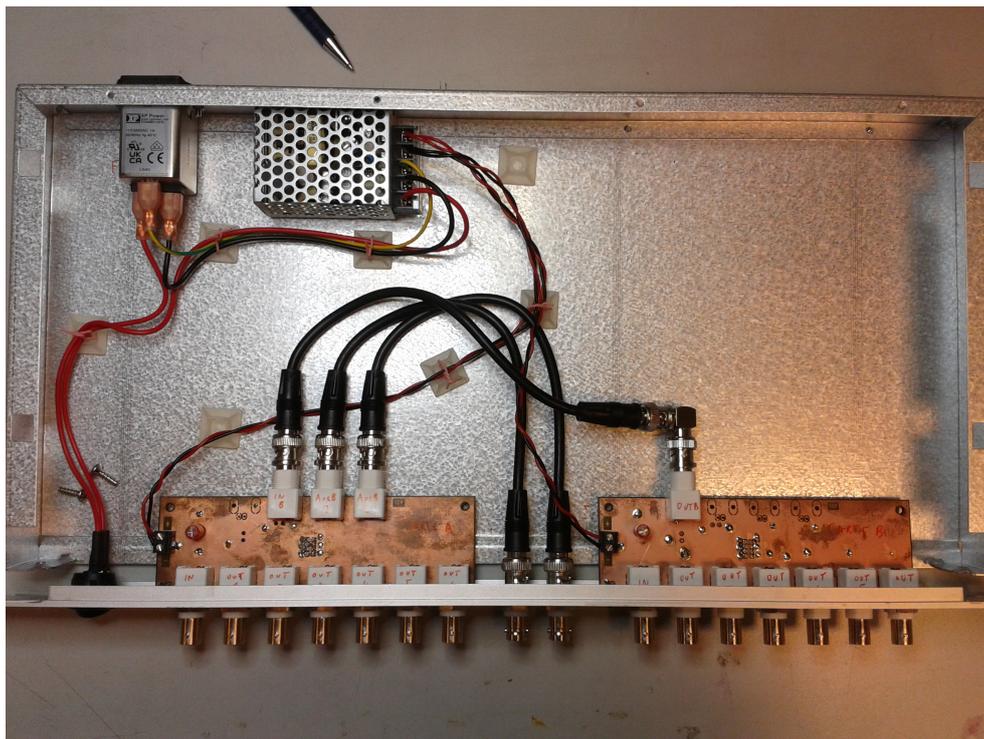


Figure 61: Amplificateur de distribution mis en boîtier rack 19 pouces.

## A.2 Amplificateur transimpédance

La mesure de la résonance du diapason en quartz, utilisé comme capteur de force dans la microscopie en champ proche, représente une facette cruciale du système. L'objectif consiste à appliquer une tension sinusoïdale sur le résonateur tout en mesurant le courant qui le traverse, une approche revenant à évaluer l'impédance en régime alternatif. L'identification de la fréquence de résonance se fait par la détection du minimum d'impédance.

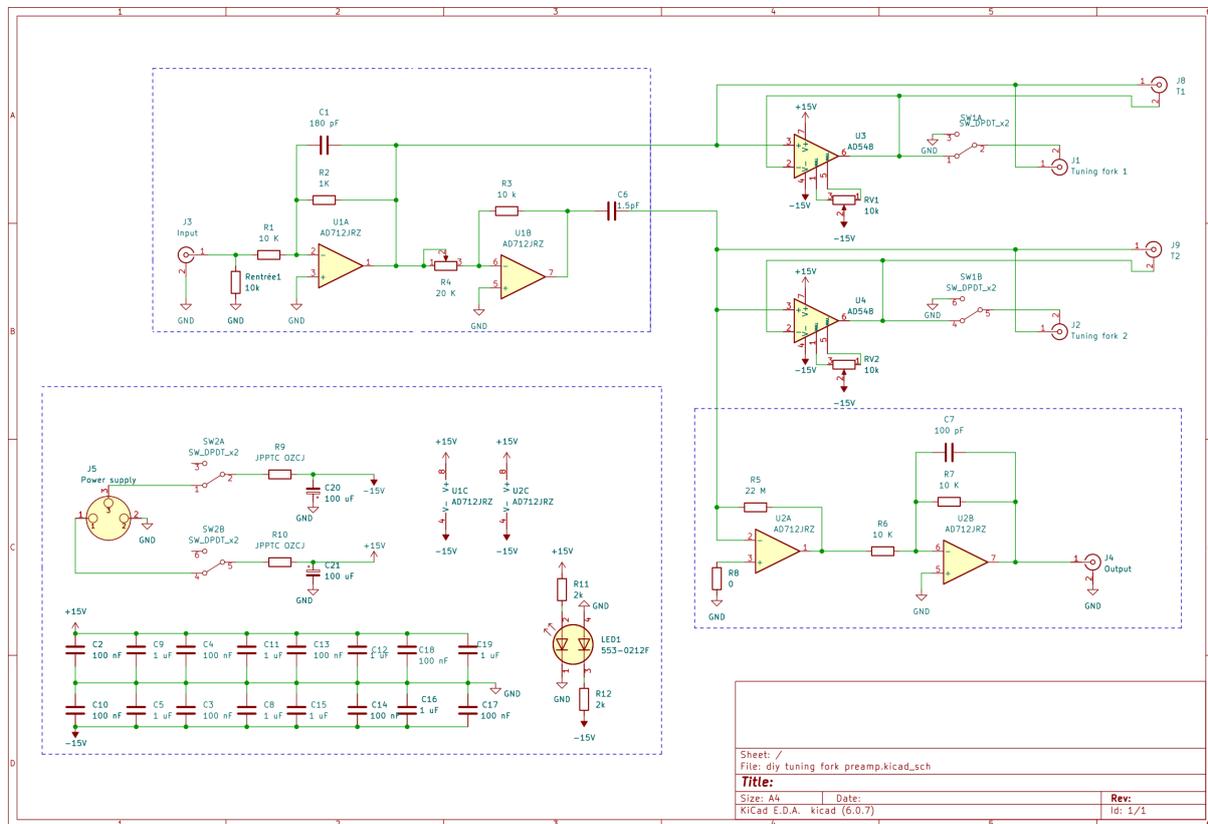
Toutefois, le courant mesuré étant extrêmement faible, il est essentiel que la méthode de mesure interfère le moins possible avec les résultats. La solution adoptée repose sur l'utilisation d'amplificateurs transimpédance, qui, couplés aux diapasons, forment un système de microscopie à force atomique à la fois simple et performant [44, 45].

Bien que des amplificateurs transimpédance prêts à l'emploi soient disponibles, tels que le HF2TA de Zurich Instruments, ils ne répondent pas entièrement à nos besoins spécifiques, notamment en termes de gamme dynamique des signaux et de leur capacité à ne pas perturber le signal mesuré. Ce point est critique pour les systèmes AFM utilisant des diapasons, car la capacité électrique du résonateur est minime, et les capacités parasites avec l'amplificateur peuvent influencer la résonance du circuit.

NANOSENSORS offre une série de guides techniques détaillant la conception d'amplificateurs transimpédance adaptés à l'usage de ces résonateurs en AFM, permettant de compenser les capacités parasites des câbles par l'ajustement d'une capacité variable et optimisés pour ces applications.

Malgré la disponibilité de ces solutions, la nécessité d'une conception personnalisée est devenue apparente, menant au développement d'un amplificateur sur mesure. Les améliorations apportées incluent un boîtier éloigné du résonateur, un routage optimisé pour réduire le bruit et l'introduction d'une garde active via des câbles triaxiaux, éliminant la capacité parasite des câbles en plaçant la gaine au même potentiel que le conducteur

central. Cette conception sur mesure s'appuie sur l'état de l'art tout en introduisant des innovations pour répondre précisément aux exigences de notre système AFM.



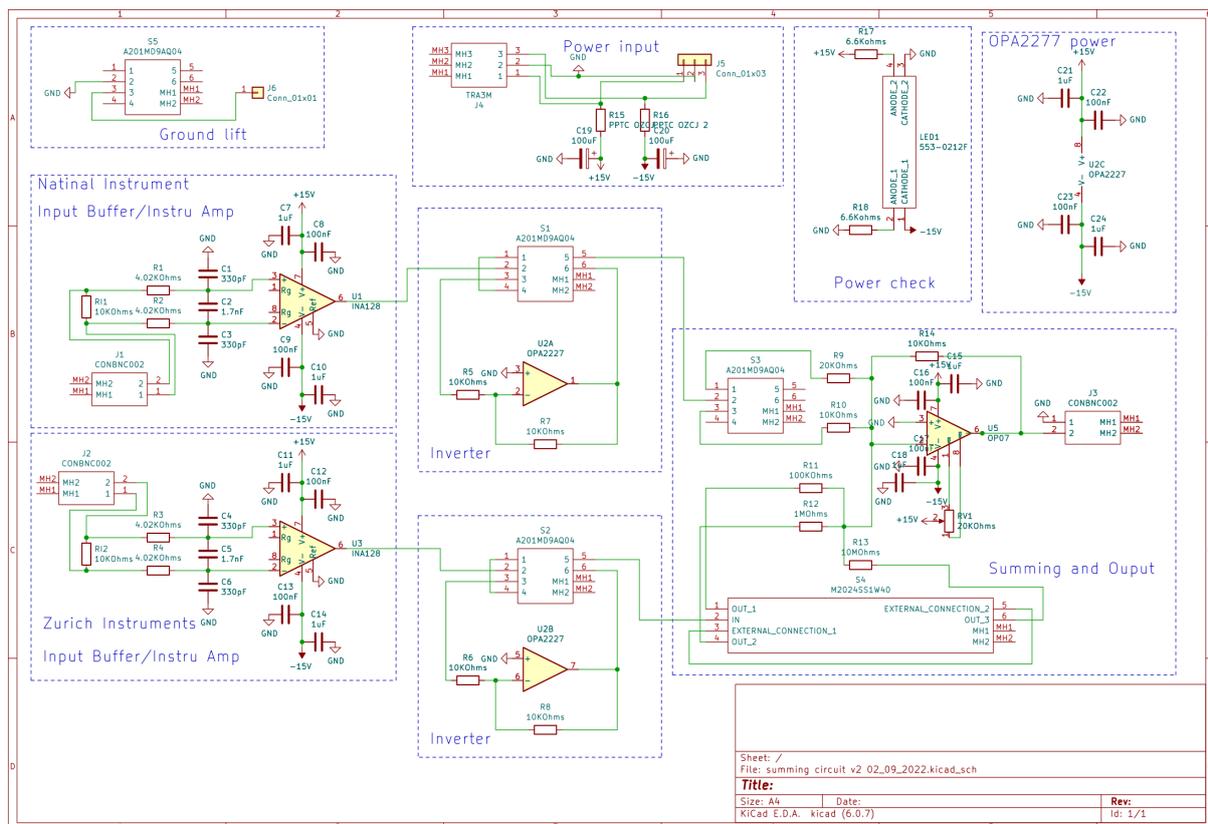
**Figure 62:** Schéma électronique de l'amplificateur transimpédance pour la pointe AFM-NV. Un buffer d'entrée va charger le tuning fork en lui appliquant une tension sinusoïdale. La section transimpédance permet de mesurer le courant traverser le résonateur mécanique. La conception permet de compenser la capacité parasite des câbles via un condensateur variable. Ce système est complété par une garde active permettant d'annuler cette capacité parasite au besoin pour des câbles longs.

### A.3 Sommateur analogique

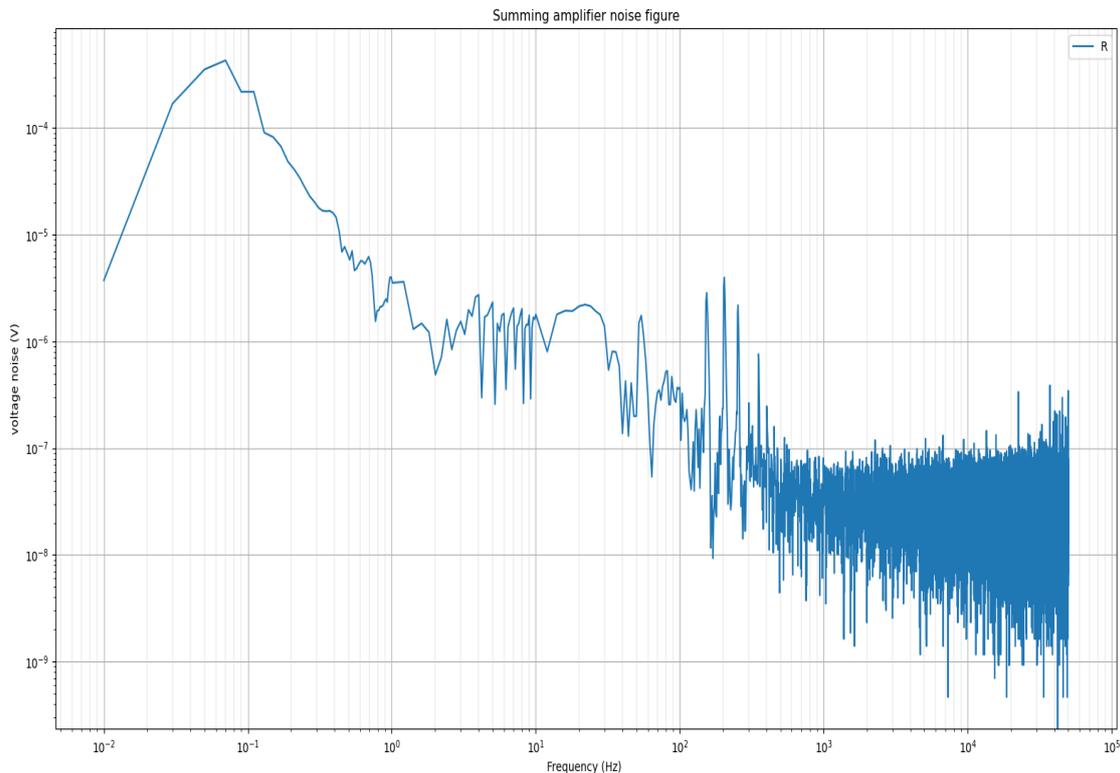
Dans notre système, la commande de position de l'échantillon est réalisée à travers des tensions analogiques produites par un DAQ externe, qui pilotent un amplificateur haute tension de Physik Instrumente. Cet amplificateur, contrôlé en tension, convertit les signaux en déplacements précis grâce à des boucles d'asservissement basées sur des capteurs de positions capacitifs. Toutefois, pour maintenir une distance constante entre la pointe et l'échantillon pendant les balayages sur les axes  $X$  et  $Y$ , la consigne sur l'axe  $Z$  (l'axe optique) nécessite une correction continue. Cette correction est réalisée par une boucle d'asservissement qui ajuste la distance en se basant sur la résonance d'un tuning fork, mesurée par un lock-in doté d'un régulateur PID. Ce dispositif génère une tension analogique représentant l'erreur du PID pour ajuster la position sur l'axe  $Z$ .

Pour intégrer les tensions de commande et de correction avant leur application au

contrôleur, nous avons opté pour un circuit sommateur analogique que j'ai conçu et réalisé. Cette conception s'appuie sur des topologies éprouvées, avec un accent particulier mis sur la réduction du bruit et de l'erreur dans la sommation des tensions, à travers une sélection rigoureuse des composants et un filtrage approfondi. Les signaux d'entrée sont isolés par des amplificateurs d'instrumentation, permettant des entrées différentielles et évitant les problèmes de boucles de masse. Chaque signal peut être inversé si nécessaire, et tous les amplificateurs opérationnels sélectionnés affichent un bruit intrinsèque très faible, un offset minimal, et un coefficient de température réduit. L'objectif est d'éviter toute perturbation du système de positionnement par un élément de la chaîne de mesure. Pour valider cette conception, des analyses spectrales de bruit sur la sortie du sommateur ont également été effectuées.



**Figure 63:** Schéma électronique du sommateur analogique permettant d'ajouter la rétroaction provenant du PID du lock-in au signal de consigne tout en limitant le bruit parasite et les dérives.



**Figure 64:** *Mesures de bruit intrinsèque du circuit en fonction de la fréquence du circuit. Pour ces mesures, les entrées et les sorties sont chargées 50 Ohms et réalisées avec un lock-in, permettant ainsi d'accéder aux basses fréquences. On observe ici une tension de bruit très faible avec un maximum au niveau du mHz avec environ 0.5mV correspondant à un bruit de positionnement de 250pm. Aux fréquences de résonance du diapason, on gagne trois ordres de grandeurs sur le bruit. On remarque des pics correspondant au 50Hz du secteurs et ses harmoniques.*

## A.4 Boxcar averager

Pour affiner certains protocoles de mesure, notamment ceux nécessitant un verrouillage sur la résonance EPR du centre NV, nous avons dû recourir à des mesures lock-in utilisant la fluorescence comme signal d'entrée. Cependant, la plupart des lock-in ne sont pas conçus pour générer des signaux TTL où l'information est portée par la variation du nombre de coups par seconde. Bien que les filtres passe-bas intégrés à ces appareils pourraient théoriquement permettre une telle utilisation, ils ne sont pas spécifiquement destinés à cet effet, rendant les résultats potentiels incertains.

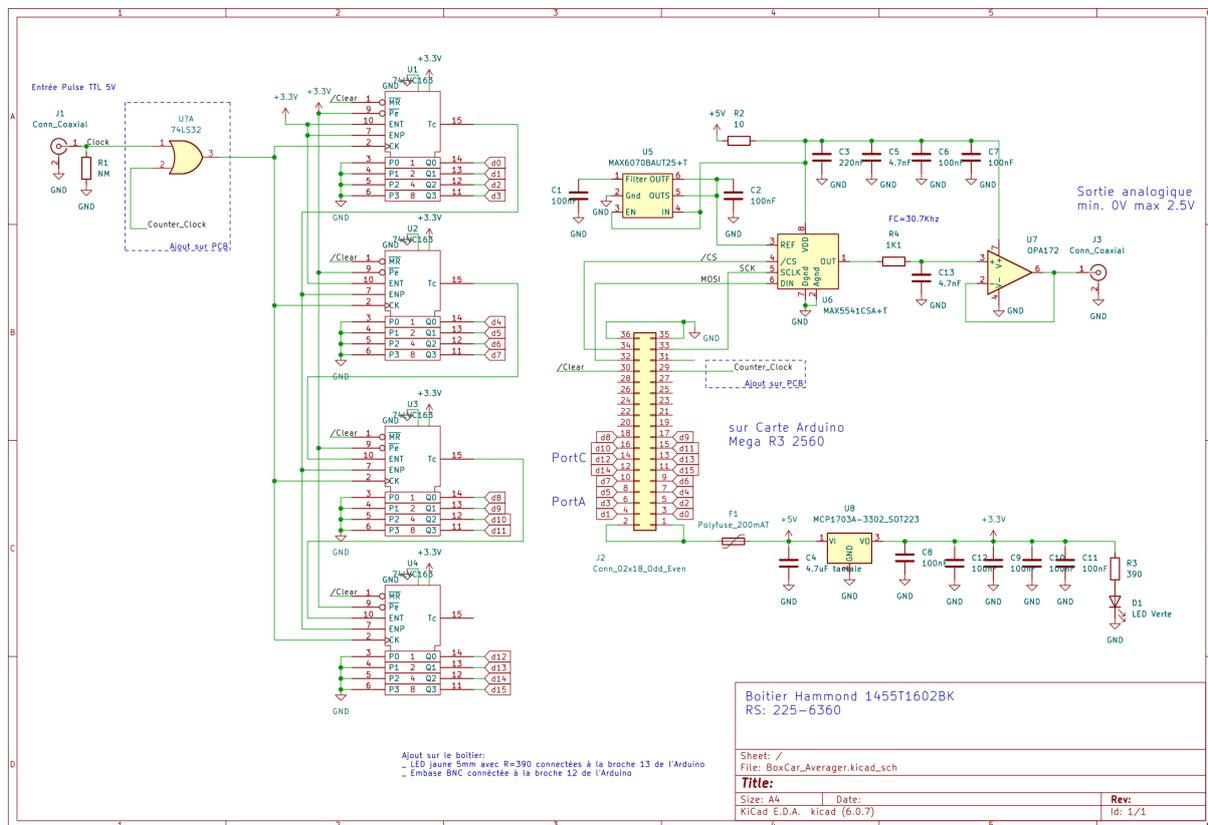
Dans les cas où l'on analyse un signal basé sur la variation du nombre de coups par seconde, on utilise généralement un intégrateur à fenêtre glissante, connu sous le nom de boxcar averager. Certains amplificateurs de verrouillage commerciaux, comme le UHFLI de Zurich Instruments, offrent cette fonctionnalité, mais comme nous ne disposons pas de cet équipement, il était nécessaire de trouver une solution intermédiaire entre le signal des photodiodes et l'entrée analogique du lock-in. Des équipements adaptés,

issus principalement du domaine de la physique nucléaire et conformes au standard NIM (Nuclear Instrumentation Module), existent. Toutefois, les fabricants de ces modules se font rares, et les produits n'ont guère évolué depuis des décennies.

Aucun boxcar averager disponible sur le marché ne pouvait répondre à nos besoins spécifiques, notamment en ce qui concerne le traitement simultané de signaux TTL, la flexibilité des périodes d'intégration (de  $50 \mu\text{s}$  à  $250\text{ms}$ ), un gain programmable, et une précision de 16 bits pour des fréquences allant de 0 à  $10^8$  coups par seconde.

Face à ces contraintes, j'ai initialement envisagé une conception basée sur une architecture purement analogique, utilisant des intégrateurs. Cependant, la résolution et la stabilité en fréquence requises n'étaient pas atteignables avec l'électronique analogique. L'utilisation de FPGA haute fréquence a également été envisagée, mais mes compétences et le temps disponible ne permettaient pas d'adopter cette approche.

Eyub Yildiz a finalement proposé une solution d'une élégance remarquable, impliquant l'utilisation de compteurs binaires haute fréquence pour le comptage, et d'un Arduino Mega pour la lecture des valeurs et le contrôle d'un DAC (convertisseur numérique-analogique) 16 bits pour la sortie de tension. L'utilisation d'un Arduino Mega permet aussi de contrôler par ordinateur le micro-contrôleur pour venir changer les paramètres du boxcar averager facilement via USB. Cette solution, non seulement économique, s'est avérée sur mesure et surpasse en performance les alternatives commerciales.



**Figure 65:** Schéma électronique du Boxcar averager conçu pour les protocoles de mesures rapides des résonances par PLL.



**Figure 66:** *Implémentation matériel du boxcar averager, on observe la simplicité de mise en oeuvre via l'utilisation d'une carte Arduino méga.*

## A.5 Alimentations multirails

Pour conclure cette section sur les développements électroniques essentiels aux microscopes, il est crucial de discuter d'un aspect souvent négligé : les alimentations électriques. De nombreux équipements de ce système, qu'ils soient acquis du commerce ou développés en interne, requièrent des alimentations stabilisées en continu. Par exemple, les deux photodiodes nécessitent 5 Volts sous un courant maximal de 2 A. Ces alimentations doivent être à faible bruit pour ne pas interférer avec les mesures. Jusqu'à récemment, j'employais des alimentations conçues par mes soins ou des alimentations de laboratoire ajustables. Toutefois, face à l'augmentation du nombre d'alimentations requises, nous avons opté pour la création d'un boîtier en rack de 19 pouces regroupant toutes les tensions, puissances et niveaux de bruit nécessaires aux différents équipements du système.

Ce boîtier offre 12 sorties variées en termes de tension, puissance, bruit et symétrie. La conception de M. Yildiz repose sur l'utilisation d'une carte électronique distincte pour chaque rail de sortie, simplifiant le système par l'emploi de seulement deux types de cartes : une pour les alimentations linéaires à très faible bruit et une autre pour les alimentations à découpage, adaptées aux charges plus élevées. Toutes ces alimentations sont contrôlables via un ordinateur à l'aide d'un Arduino Micro.

Ce dernier développement réduit non seulement les risques d'erreur de câblage susceptibles d'endommager des composants sensibles tels que les commutateurs micro-ondes ou les amplificateurs, mais il améliore également le confort d'utilisation grâce à la possibilité de contrôle par USB.



**Figure 67:** *Rack d'alimentations multirails sur mesure contrôlable par ordinateur*



# BIBLIOGRAPHY

---

- [1] M. Wyss, K. Bagani, D. Jetter, E. Marchiori, A. Vervelaki, B. Gross, J. Ridderbos, S. Gliga, C. Schönenberger, and M. Poggio. Magnetic, thermal, and topographic imaging with a nanometer-scale squid-on-lever scanning probe. *Physical Review Applied*, 17(3):034002, March 2022.
- [2] Massimo Ghidini, Francesco Maccherozzi, Sarnjeet S. Dhesi, and Neil D. Mathur. Xpem and mfm imaging of ferroic materials. *Advanced Electronic Materials*, 8(6), May 2022.
- [3] Y. Feng, P. Mirzadeh Vaghefi, S. Vranjkovic, M. Penedo, P. Kappenberger, J. Schwenk, X. Zhao, A.-O. Mandru, and H.J. Hug. Magnetic force microscopy contrast formation and field sensitivity. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 551:169073, June 2022.
- [4] Jean-Philippe Tetienne. *Un microscope de champ magnétique basé sur le défaut azotolacune du diamant : réalisation et application à l'étude de couches ferromagnétiques ultraminces*. PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2014.
- [5] Marcus W. Doherty, Neil B. Manson, Paul Delaney, Fedor Jelezko, Jörg Wrachtrup, and Lloyd C.L. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Physics Reports*, 528(1):1–45, July 2013.
- [6] Boris M. Chernobrod and Gennady P. Berman. Spin microscope based on optically detected magnetic resonance. *Journal of Applied Physics*, 97(1), December 2004.
- [7] T.A. Kennedy, F.T. Charnock, J.S. Colton, J.E. Butler, R.C. Linares, and P.J. Doring. Single-qubit operations with the nitrogen-vacancy center in diamond. *physica status solidi (b)*, 233(3):416–426, October 2002.
- [8] Gang-Qin Liu and Xin-Yu Pan. Quantum information processing with nitrogen-vacancy centers in diamond. *Chinese Physics B*, 27(2):020304, February 2018.
- [9] A. Gruber, A. Drabenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers. *Science*, 276(5321):2012–2014, June 1997.
- [10] Audrius Alkauskas, Bob B Buckley, David D Awschalom, and Chris G Van de Walle. First-principles theory of the luminescence lineshape for the triplet transition in diamond nv centres. *New Journal of Physics*, 16(7):073026, July 2014.
- [11] Loïc Rondin. *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*. PhD thesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2012.
- [12] E. D. Herbschleb, H. Kato, Y. Maruyama, T. Danjo, T. Makino, S. Yamasaki, I. Ohki, K. Hayashi, H. Morishita, M. Fujiwara, and N. Mizuochi. Ultra-long coherence times amongst room-temperature solid-state spins. *Nature Communications*, 10(1), August 2019.

- [13] A. Jarmola, V. M. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov, and D. Budker. Temperature- and magnetic-field-dependent longitudinal spin relaxation in nitrogen-vacancy ensembles in diamond. *Physical Review Letters*, 108(19):197601, May 2012.
- [14] K. D. Jahnke, B. Naydenov, T. Teraji, S. Koizumi, T. Umeda, J. Isoya, and F. Jelezko. Long coherence time of spin qubits in <sup>12</sup>C enriched polycrystalline chemical vapor deposition diamond. *Applied Physics Letters*, 101(1):012405, July 2012.
- [15] Ryosuke Fukuda, Priyadharshini Balasubramanian, Itaru Higashimata, Godai Koike, Takuma Okada, Risa Kagami, Tokuyuki Teraji, Shinobu Onoda, Moriyoshi Haruyama, Keisuke Yamada, Masafumi Inaba, Hayate Yamano, Felix M Stürner, Simon Schmitt, Liam P McGuinness, Fedor Jelezko, Takeshi Ohshima, Takahiro Shinada, Hiroshi Kawarada, Wataru Kada, Osamu Hanaizumi, Takashi Tanii, and Junichi Isoya. Lithographically engineered shallow nitrogen-vacancy centers in diamond for external nuclear spin sensing. *New Journal of Physics*, 20(8):083029, August 2018.
- [16] J.-P. Tetienne, T. Hingant, L. Rondin, A. Cavaillès, L. Mayer, G. Dantelle, T. Gacoin, J. Wrachtrup, J.-F. Roch, and V. Jacques. Spin relaxometry of single nitrogen-vacancy defects in diamond nanocrystals for magnetic noise sensing. *Physical Review B*, 87(23):235436, June 2013.
- [17] J R Maze, A Dréau, V Waselowski, H Duarte, J-F Roch, and V Jacques. Free induction decay of single spins in diamond. *New Journal of Physics*, 14(10):103041, October 2012.
- [18] Abdelghani Laraoui, Jonathan S. Hodges, and Carlos A. Meriles. Nitrogen-vacancy-assisted magnetometry of paramagnetic centers in an individual diamond nanocrystal. *Nano Letters*, 12(7):3477–3482, June 2012.
- [19] 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, and M. D. Lukin. Room-temperature quantum bit memory exceeding one second. *Science*, 336(6086):1283–1286, June 2012.
- [20] G. de Lange, D. Ristè, V. V. Dobrovitski, and R. Hanson. Single-spin magnetometry with multipulse sensing sequences. *Physical Review Letters*, 106(8):080802, February 2011.
- [21] Gopalakrishnan Balasubramanian, Philipp Neumann, Daniel Twitchen, Matthew Markham, Roman Kolesov, Norikazu Mizuochi, Junichi Isoya, Jocelyn Achard, Johannes Beck, Julia Tessler, Vincent Jacques, Philip R. Hemmer, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. *Nature Materials*, 8(5):383–387, April 2009.
- [22] J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, and M. D. Lukin. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution. *Nature Physics*, 4(10):810–816, September 2008.
- [23] G. de Lange, Z. H. Wang, D. Ristè, V. V. Dobrovitski, and R. Hanson. Universal dynamical decoupling of a single solid-state spin from a spin bath. *Science*, 330(6000):60–63, October 2010.
- [24] P Szańkowski, G Ramon, J Krzywda, D Kwiatkowski, and Ł Cywiński. Environmental noise spectroscopy with qubits subjected to dynamical decoupling. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 29(33):333001, July 2017.

- [25] C. L. Degen. Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor. *Applied Physics Letters*, 92(24):243111, June 2008.
- [26] J-P Tetienne, L Rondin, P Spinicelli, M Chipaux, T Debuisschert, J-F Roch, and 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(10):103033, October 2012.
- [27] J R Maze, A Gali, E Togan, Y Chu, A Trifonov, E Kaxiras, and M D Lukin. Properties of nitrogen-vacancy centers in diamond: the group theoretic approach. *New Journal of Physics*, 13(2):025025, February 2011.
- [28] Marcus W. Doherty, Viktor V. Struzhkin, David A. Simpson, Liam P. McGuinness, Yufei Meng, Alastair Stacey, Timothy J. Karle, Russell J. Hemley, Neil B. Manson, Lloyd C.L. Hollenberg, and Steven Prawer. Electronic properties and metrology applications of the diamond nv center under pressure. *Physical Review Letters*, 112(4):047601, January 2014.
- [29] M. W. Doherty, F. Dolde, H. Fedder, F. Jelezko, J. Wrachtrup, N. B. Manson, and L. C. L. Hollenberg. Theory of the ground-state spin of the nv- center in diamond. *Physical Review B*, 85(20):205203, May 2012.
- [30] Florian Dolde, Marcus W. Doherty, Julia Michl, Ingmar Jakobi, Boris Naydenov, Sebastien Pezzagna, Jan Meijer, Philipp Neumann, Fedor Jelezko, Neil B. Manson, and Jörg Wrachtrup. Nanoscale detection of a single fundamental charge in ambient conditions using the nv- center in diamond. *Physical Review Letters*, 112(9):097603, March 2014.
- [31] Gopalakrishnan Balasubramanian, I. Y. Chan, Roman Kolesov, Mohannad Al-Hmoud, Julia Tisler, Chang Shin, Changdong Kim, Aleksander Wojcik, Philip R. Hemmer, Anke Krueger, Tobias Hanke, Alfred Leitenstorfer, Rudolf Bratschitsch, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions. *Nature*, 455(7213):648–651, October 2008.
- [32] Sven Rohr. *Hybrid spin-nanomechanical systems in parametric interaction*. PhD thesis, Grenoble University, 2014.
- [33] Martin Berthel, Oriane Mollet, Géraldine Dantelle, Thierry Gacoin, Serge Huant, and Aurélien Drezet. Photophysics of single nitrogen-vacancy centers in diamond nanocrystals. *Physical Review B*, 91(3):035308, January 2015.
- [34] Laure Mercier de Lépinay. *Habillage mécanique d’un nanofil par un champ de force : de la mesure vectorielle ultrasensible aux systèmes quantiques hybrides*. PhD thesis, Université Grenoble Alpes, 2017.
- [35] Andreas Moser, Kentaro Takano, David T Margulies, Manfred Albrecht, Yoshiaki Sonobe, Yoshihiro Ikeda, Shouheng Sun, and Eric E Fullerton. Magnetic recording: advancing into the future. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 35(19):R157–R167, September 2002.
- [36] R. O’Barr, M. Lederman, and S. Schultz. A scanning microscope using a magnetoresistive head as the sensing element. *Journal of Applied Physics*, 79(8):6067–6069, April 1996.
- [37] P. Rice and J. Moreland. Tunneling-stabilized magnetic force microscopy of bit tracks on a hard disk. *IEEE Transactions on Magnetics*, 27(3):3452–3454, May 1991.

- [38] P. Welter, B.A. Jónsson, S. Josephy, A. Wittmann, A. Morales, G. Puebla-Hellmann, and C.L. Degen. Fast scanning nitrogen-vacancy magnetometry by spectrum demodulation. *Physical Review Applied*, 19(3):034003, March 2023.
- [39] Tianqi Zhu, Jan Rhensius, Konstantin Herb, Viraj Damle, Gabriel Puebla-Hellmann, Christian L. Degen, and Erika Janitz. Multicone diamond waveguides for nanoscale quantum sensing. *Nano Letters*, 23(22):10110–10117, November 2023.
- [40] Mortimer Abramowitz, Kenneth R. Spring, H. Ernst Keller, and Michael W. Davidson. Basic principles of microscope objectives. *BioTechniques*, 33(4):772–781, October 2002.
- [41] Philipp Fuchs, Michel Challier, and Elke Neu. Optimized single-crystal diamond scanning probes for high sensitivity magnetometry. *New Journal of Physics*, 20(12):125001, December 2018.
- [42] Georg Nadorff and Frank DeWitt. Reflexicon objectives for imaging. In R. Barry Johnson, Virendra N. Mahajan, and Simon Thibault, editors, *Current Developments in Lens Design and Optical Engineering XIII*. SPIE, October 2012.
- [43] Eric Clot, Isabelle Joumard, Vladimir Naletov, and Olivier Klein. Systeme optique de focalisation et de collection, 2022.
- [44] W. H. J. Rensen, N. F. van Hulst, A. G. T. Ruiter, and P. E. West. Atomic steps with tuning-fork-based noncontact atomic force microscopy. *Applied Physics Letters*, 75(11):1640–1642, September 1999.
- [45] J.-M. Friedt and É. Carry. Introduction to the quartz tuning fork. *American Journal of Physics*, 75(5):415–422, May 2007.