

TP : Centre NV du diamant

Philéas Thibault - Boris Baudel - Benjamin Oksenberg

Ecole Normale Supérieure Paris-Saclay - ArteQ

1. Introduction Théorique

Le diamant est un matériau carboné dans lequel existent de nombreux défauts cristallins. L'un de ces défauts est le centre "Nitrogen-Vacancy" (appelé par la suite "centre NV") qui associe un atome d'azote avec un site non occupé adjacent à l'atome d'azote. Dans l'état de charge négatif, le centre NV possède deux électrons qui forment un spin $S = 1$. On pourrait penser *a priori* que l'état fondamental est dégénéré, ce n'est pas le cas. Nous allons ici déterminer sa structure énergétique interne et en déduire la réponse à l'application d'un stimulus extérieur, comme une contrainte mécanique, un champ électrique ou un champ magnétique. Le système est décrit par l'observable vectorielle $\hat{\mathbf{S}} = (\hat{S}_X, \hat{S}_Y, \hat{S}_Z)$ correspondant à un spin 1. Dans la base $|m_S = +1\rangle, |m_S = 0\rangle, |m_S = -1\rangle$ des états propres de \hat{S}_Z , ses composantes s'écrivent :

$$\hat{S}_X = \frac{\hbar}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{S}_Y = \frac{\hbar}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 \\ i & 0 & -i \\ 0 & i & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{S}_Z = \hbar \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}.$$

Nous pouvons observer en figure 1 le schéma du centre NV du diamant. En figure 2, on observe son état d'émission (rouge) et son état d'absorption (vert), ainsi que son état métastable.

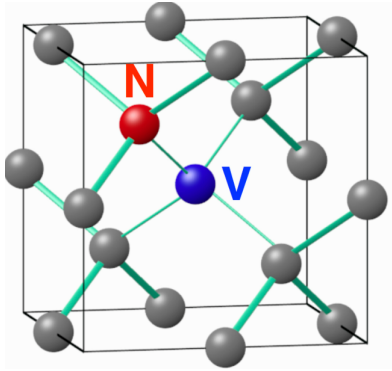


Figure 1: Centre NV dans le diamant

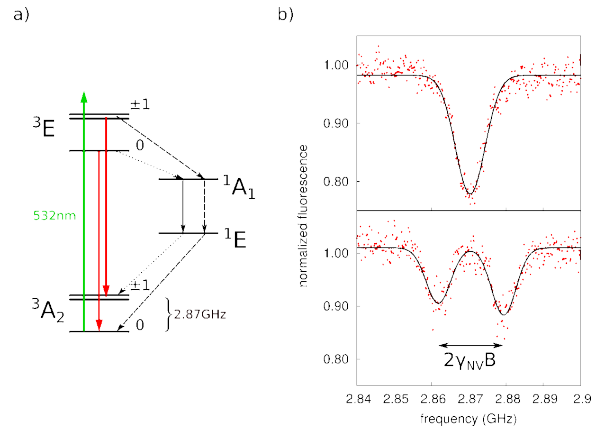


Figure 2: États d'émission (Rouge) et d'absorption (Vert) du centre NV

Pour $E = 0$. Les états propres de \hat{H}_0 sont alors l'état $|m_S = 0\rangle$, dont l'énergie est nulle, et les états $|m_S = \pm 1\rangle$ d'énergie $\hbar D$. On veut étudier l'effet d'un champ magnétique \mathbf{B} sur les énergies des états $|m_S = 0, \pm 1\rangle$.

$$\mathbf{B} = B_{\parallel} \hat{\mathbf{e}}_z + B_{\perp} \hat{\mathbf{e}}_x, \quad (4)$$

On rappelle la forme de cette interaction magnétique (effet Zeeman) :

$$W_Z = g_{NV} \mu_B \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}} / \hbar, \quad (5)$$

où g_{NV} est le facteur gyromagnétique du centre NV et μ_B le magnéton de Bohr. On regardera indépendamment l'effet des contributions selon z et x .

Si $E = 0$ et $B_{\perp} \neq 0$, on a :

$$\hat{H}_0 = \frac{D\hat{S}_z^2}{\hbar} + \frac{g_{NV}\mu_B}{\hbar} B_{\perp} \hat{S}_x = \begin{pmatrix} D\hbar & \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} \\ 0 & \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} & D\hbar \end{pmatrix}.$$

Les états propres et les valeurs propres associées sont donnés par :

$$\hat{H}_0 |m_S = \pm 1\rangle = D\hbar |m_S = \pm 1\rangle + \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} |m_S = 0\rangle,$$

$$\hat{H}_0 |m_S = \pm 1\rangle = D\hbar |m_S = \pm 1\rangle + \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} |m_S = 0\rangle,$$

$$\hat{H}_0 |m_S = 0\rangle = \frac{g_{NV}\mu_B B_{\perp}}{\sqrt{2}} (|m_S = +1\rangle + |m_S = -1\rangle).$$

La composante B_{\parallel} laisse les états propres $|m_S = \pm 1\rangle$ inchangés, mais leurs énergies propres deviennent $D\hbar \pm g_{NV}\mu_B B_{\parallel}$. Un champ magnétique dans la direction z pourra donc être détecté et mesuré.

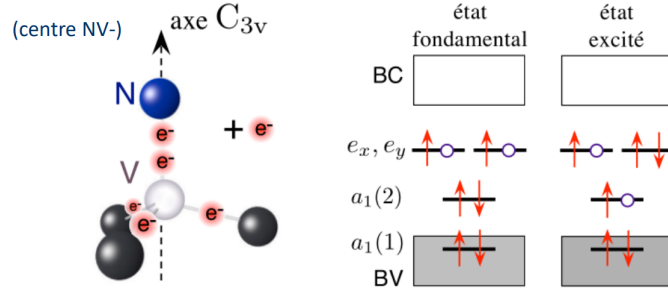


Figure 3: Fonctionnement de la bande de valence et de conduction dans un centre NV

2. Montage expérimental

On dispose d'un émetteur laser vert et d'un échantillon de diamant contenant des centres NV. L'échantillon est placé sur un support au centre de bobines qui nous serviront plus tard à lui appliquer un champ magnétique. Dans un premier temps, le laser est commandé de façon continue. Son chemin optique est ajusté pour qu'il soit parfaitement aligné avec l'échantillon. On place un filtre réfléchissant le vert et transmettant le rouge afin de séparer le faisceau de pompe de l'émission correspondant à la fluorescence des centres NV. Celle-ci est recueillie par un photodétecteur. Les miroirs sont enfin ajustés pour maximiser l'amplitude du signal.

3. D  tection optique de la r  sonance magn  tique

En raison du couplage plus important entre le niveau m  tastable du centre NV et les   tats de polarisation $|m_s = \pm 1\rangle$. L'excitation par le laser vert a pour effet de d  peupler ces   tats et donc de polariser le centre NV dans les niveaux $|m_s = 0\rangle$. Ainsi, appliquer une excitation microonde dont la fr  quence est accord  e avec la transition $|m_s = 0\rangle \longleftrightarrow |m_s = \pm 1\rangle$ de l'  tat fondamental a pour effet de d  polariser les centres NV et donc de peupler plus facilement leurs niveaux m  tastables. En cons  quence, leur fluorescence dans le rouge diminue.

   champ magn  tique nul, l'excitation microonde est balay  e en fr  quence autour de 2.87 GHz afin de d  terminer la fr  quence de la transition. On constate que la chute de fluorescence est d  doubl  e en deux pics l  g  rement d  cal  s bien que le champ magn  tique soit nul. La raison de la lev  e de d  g  n  rescence des niveaux $|m_s = \pm 1\rangle$ s'explique par des contraintes dans le diamant ayant un m  me effet qu'un champ magn  tique sur l'Hamiltonien des centres NV.

Par la suite, un champ magn  tique quelconque est appliqu      l'  chantillon. Les quatre orientations possibles des centres NV per  oivent alors un champ magn  tique parall  le diff  rent. Les niveaux $|m_s = \pm 1\rangle$ se retrouvent donc chacun    des   nergies diff  rentes, la fluorescence chute alors pour huit fr  quences diff  rentes chacune divis  es en trois fr  quences hyperfines (Fig.4).

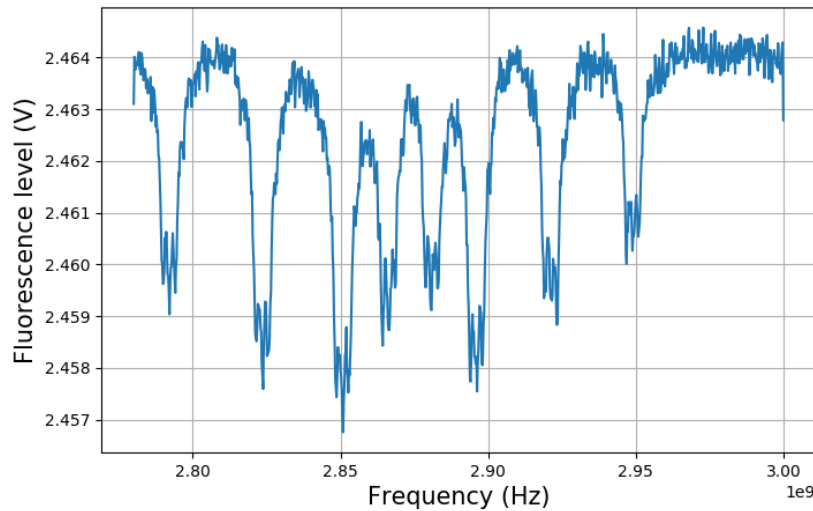


Figure 4: Fluorescence de l'  chantillon suivant la fr  quence d'excitation microonde. Huit pics sont visibles pour les niveaux $|m_s = \pm 1\rangle$ du fondamental des quatre orientations possibles des centres NV.

On tente alors d'appliquer un champ magn  tique parall  le    une des orientations des centres NV. L'  chantillon n'  tant pas parfaitement align   aux bobines, on trouve une telle direction du champ pour des angles polaires $\theta = 59^\circ$ et $\phi = 40^\circ$. Dans cette configuration, trois des orientations des centres NV per  oivent un m  me champ magn  tique parall  le, environ 33% ($\cos(109^\circ)$) plus faible que pour la quatri  me orientation. La mesure de fluorescence ne fait alors ressortir que quatre pics. Les deux pics centraux, environ trois fois plus contrast  s, correspondent aux trois orientations   quivalentes et les deux pics sur les bords correspondent aux centres NV orient  s selon la direction du champ magn  tique (Fig.5). La chute de fluorescence d'un des niveaux $|m_s = \pm 1\rangle$ des centres NV align  s avec le champ est ajust  e avec trois lorentziennes (Fig.6). On obtient alors les fr  quences associ  es aux niveaux hyperfins suivantes : 2799.65 ± 0.02 MHz, 2801.85 ± 0.02 MHz et 2803.94 ± 0.02 MHz. Soit un   cart en fr  quence de 2.08 ± 0.03 MHz et de 2.21 ± 0.03 MHz entre les transitions hyperfines.

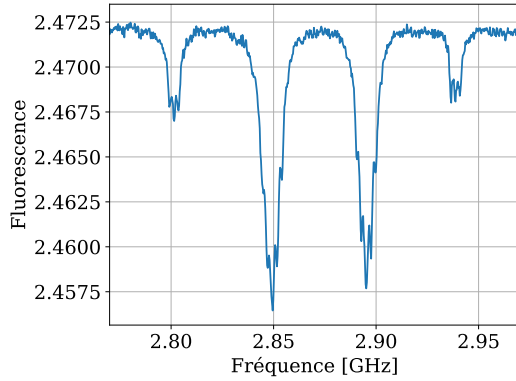


Figure 5: Fluorescence de l  chantillon lorsque le champ magn  tique est align   avec une des directions des centres NV.

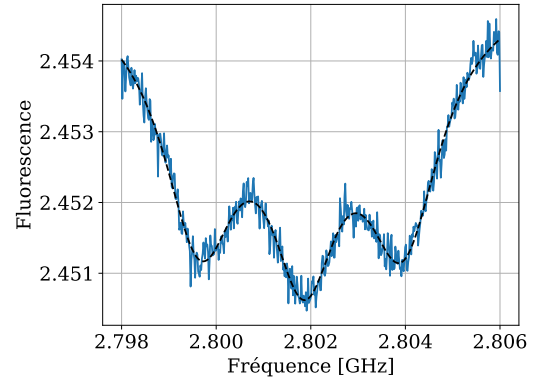


Figure 6: Fluorescence de l  chantillon lorsque la fr  quence d  citation correspond    celle d  un des niveaux $|m_s = \pm 1\rangle$. La chute de fluorescence est scind  e en trois pics correspondant aux niveaux hyperfins $m_I = -1, 0, 1$.

4. Contr  le coh  rent

Le laser est par la suite utilis   en mode puls  . Le chemin optique est modifi   en ajoutant un ensemble de miroirs, de lames demi et quart d  onde et un beam splitter polaris   sont ajout  s sur le chemin du laser de pompe afin de le faire passer par un modulateur acousto-optique (AOM) deux fois en s  lectionnant le faisceau du 1er ordre de diffraction    l  aide d  un iris. Le laser est ensuite r  align   sur l  chantillon de diamant comme pr  c  demment. Le faisceau de pompe obtenu a une puissance r  duite de 33% par rapport au laser initial. Le faisceau de fluorescence cette fois-ci est coupl      une fibre optique pour l  amener vers un photod  tecteur plus sensible.

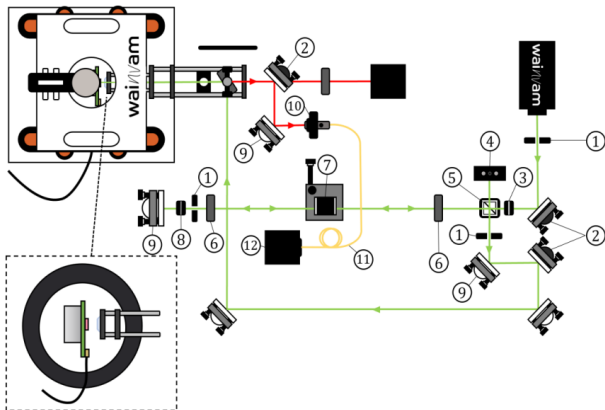


Figure 7: S  ma du montage

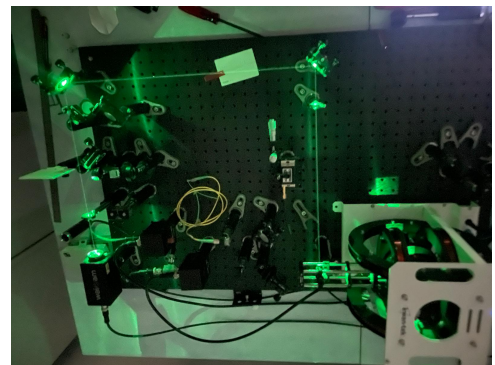


Figure 8: Photo du montage exp  rimental

5. Mesure du temps T_1 de relaxation de la polarisation

Apr  s un pulse laser suffisamment long, les centres NV sont polaris  s dans les   tats $m_s = 0$. Suite    l'arr  t de ce pulse ils relaxent dans les   tats $m_s = \pm 1$. Afin d'  valuer ce temps de relaxation T_1 , une s  rie de pulses laser   clairent l'  chantillon avec des temps mort de dur  e variable. La fluorescence est mesur  e pendant toute la dur  e de la s  quence de pulses. Afin d'  valuer l'  tat de polarisation du syst  me, l'intensit   de fluorescence sur les 12 premi  res microsecondes du pulse sont moyenn  es et normalis  es avec la moyenne des intensit  s de fluorescence sur la fin du pulse. On constate que cette valeur d  cro  t avec le temps entre les pulses, en suivant une tendance exponentielle (Fig.10). Un ajustement avec une fonction exponentielle d  croissante donne $T_1 = 5 \pm 1$ ms avec un coefficient d'ajustement $R = 0.98$. T_1 est principalement limit   par le bruit magn  tique d   aux spins d'impuret  s dans le diamant.

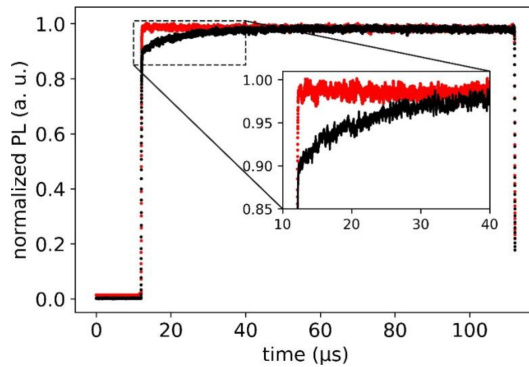


Figure 9: Exemple de mesure de fluorescence lors d'un pulse. L'  cart entre le pulse noir et le pr  c  dent   tant plus long que le temps T_1 les centres NV sont d  polaris  s, l'intensit   de fluorescence est alors plus faible en d  but de pulse.

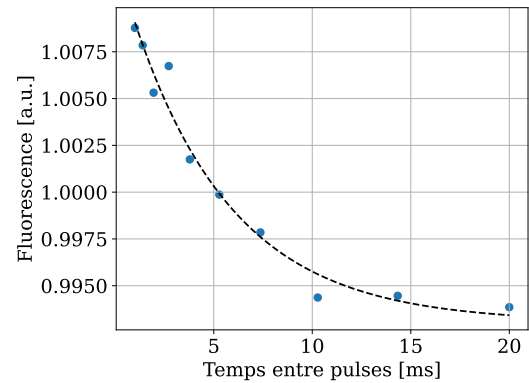


Figure 10: Rapport des intensit  s de fluorescence entre les d  but et fin des pulses optique selon leur   cart temporel. La fluorescence d  cro  t en un temps caract  ristique $T_1 = 5 \pm 1$ ms.

6. Calibration du retard du pulse.

Puisque les   tats des centres NV sont contr  l  s    la fois par des signaux microondes et des pulses optiques il est n  cessaire de synchroniser leur envoi.    champ magn  tique nul, des pulses optiques de quelques dizaines de microsecondes sont envoy  s    l'  chantillon ainsi que des pulses microondes de m  me dur  e    2.87 GHz avec un l  ger retard. On observe alors qu'au cours des pulses optiques la fluorescence chute, signe que le pulse microonde arrive    l'  chantillon    cet instant. Nous r  glons alors le d  lai entre les deux pulses de sorte que la chute de fluorescence ait lieu en m  me temps que le d  but de pulse optique. C'est ce d  lai qui sera utilis   par la suite.

7. Oscillations de Rabi

La s  quence appliqu  e aux centres NV suit les   tapes suivantes, comme illustr   dans la Figure 11 :

- 1. Initialisation :** Une impulsion laser initialise la majorit   des spins dans l'  tat $|m_s = 0\rangle$. Cette   tape garantit que la population de spins commence dans un   tat bien d  fini.

2. **Relaxation** : Après l'impulsion laser, une coupure de $\sim 1 \mu\text{s}$, soit environ 5 fois la durée de vie de l'état métastable ($\sim 200 \text{ ns}$), est appliquée. Ce délai permet à la population piégée dans l'état métastable de relaxer complètement vers $|m_S = 0\rangle$.
3. **Manipulation par impulsion micro-onde (MW)** : Une impulsion micro-onde de durée variable est envoyée. Cette impulsion provoque une rotation dans la sphère de Bloch autour de l'axe Y (ou X), entraînant une superposition des états $|m_S = 0\rangle$ et $|m_S = -1\rangle$. La durée de l'impulsion détermine l'état final obtenu :
 - Une impulsion correspondant à un quart de rotation ($T_{\pi/2}$) place le système dans l'état $\frac{1}{\sqrt{2}}(|m_S = 0\rangle + |m_S = -1\rangle)$, situé sur l'équateur de la sphère de Bloch.
 - Une impulsion correspondant à une demi-rotation (T_π) amène la population dans l'état $|m_S = -1\rangle$.
4. **Lecture de fluorescence** : Une impulsion laser est utilisée pour lire la population des niveaux de spin. Le signal de fluorescence est analysé comme suit :
 - La fluorescence initiale, mesurée au début de l'impulsion de lecture, est proportionnelle à la population dans l'état $|m_S = 0\rangle$ (état lumineux).
 - La fluorescence stationnaire, à la fin de l'impulsion, est utilisée pour normaliser le signal.

On rappelle que la probabilité de passer d'un état à un autre au cours du temps est donnée par la formule de Rabi :

$$P(t) = \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R^2 + \delta^2} \sin^2 \left(\frac{\sqrt{\Omega_R^2 + \delta^2} t}{2} \right),$$

où :

- Ω_R est la pulsation de Rabi (qui augmente avec le champ magnétique micro-onde B_{MW}) : $\Omega_R = \frac{\gamma_e B_{\text{MW}}}{\sqrt{2}}$, avec γ_e le rapport gyromagnétique de l'électron,
- t est la durée de l'impulsion micro-onde,
- $\delta = \omega_{\text{MW}} - \omega_{\text{res}}$ est le désaccord entre la pulsation micro-onde ω_{MW} et la pulsation de transition ω_{res} , c'est-à-dire l'amplitude du champ magnétique oscillant pendant l'impulsion micro-onde.

Un champ magnétique aligné avec une des directions des centres NV, identique à celui utilisé précédemment, est appliqué à l'échantillon. Le contrôle de l'état des centres NV se fait alors à la fréquence centrale de la structure hyperfine : 2 801.85 MHz. Pour un signal microonde d'une puissance de 28 dBm, on obtient des oscillations d'amplitude décroissante d'une période de 0.166 μs . Cette période est faible devant le temps de cohérence T_1 , l'atténuation des oscillations est donc principalement dû au temps de cohérence transverse T_2 qu'il est possible d'évaluer par l'expérience des franges de Ramsey. La mesure est réitérée avec des puissances microondes plus faibles. À respectivement 22 et 25 dBm, on mesure des périodes d'oscillation de 0.300 et 0.206 μs . Avec seulement trois points de mesure, il n'est pas possible d'affirmer que la pulsation de Rabi évolue bel et bien linéairement avec l'amplitude du signal. Cependant, il est possible d'estimer localement son évolution, elle est d'environ $3.7 \pm 0.5 \text{ rad.MHz/V}$ pour des amplitudes de signal de l'ordre du volt.

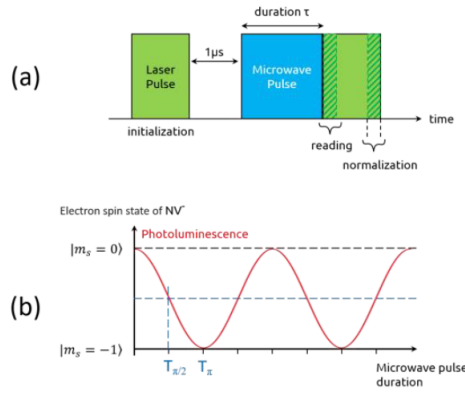


Figure 11: a) Illustration de la séquence de pulse de l'expérience des oscillations de Rabi. b) Signal idéal attendu au cours de cette expérience.

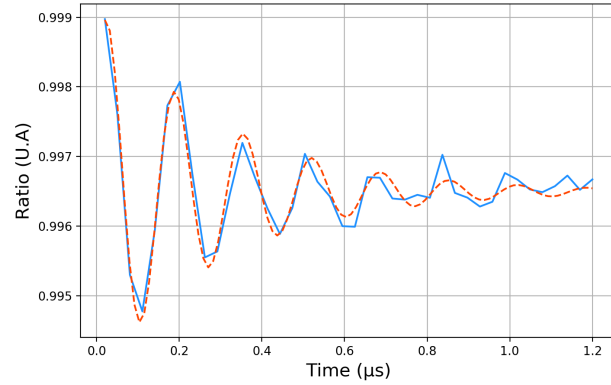


Figure 12: Rapport de l'intensité de fluorescence en début et fin de pulse de lecture en fonction de la durée du pulse microonde pour une puissance de 25 dBm. La fluorescence décrit des oscillations de Rabi avec une amplitude décroissante.

8. Franges de Ramsey

À la puissance de 28 dBm, des paires de pulses $\pi/2$ sont envoyés à l'échantillon après qu'il a été polarisé. L'état de polarisation des centres NV est alors évalué, comme précédemment, par fluorescence avec une puissance laser de 1 mW. On constate qu'à l'issue de la séquence de pulses l'état de polarisation oscille avec une amplitude décroissante avec l'intervalle de temps entre pulses (Fig.13). Les mesures sont alors ajustées avec la fonction $t \rightarrow e^{-\left(\frac{t}{T_2^*}\right)^2} \cos(\omega t + \phi)$. On obtient une fréquence d'oscillation de 2.2 MHz correspondant à l'écart entre les niveaux hyperfins, et un temps de cohérence $T_2^* = 0.56 \pm 0.08 \mu\text{s}$. Des résultats similaires peuvent être obtenus en exploitant la transformée de Fourier des données. Elle présente un unique pic à 2.4 Mhz d'une largeur à mi-hauteur de 1.1 MHz. Cela équivaut à un temps T_2^* de $0.48 \pm 0.06 \mu\text{s}$. En effet, la transformée de Fourier de $e^{-\left(\frac{t}{T_2^*}\right)^2}$ est proportionnelle à $e^{-(\pi f T_2^*)^2}$ d'où $T_2^* = \frac{2 \ln(2)}{\pi \text{FWHM}}$.

9. Conclusion

Au cours de ce travail, nous avons exploré les propriétés optiques des centres NV ainsi qu'un dispositif permettant de manipuler leur état de spin ainsi que de le mesurer par l'observation de leur fluorescence. Nous avons mis en évidence des oscillations de Rabi, marque d'un système conservant un état quantique pendant un temps significatif. Enfin, par l'expérience des franges de Ramsey, nous avons pu évaluer le temps de cohérence T_2 des centres NV comme étant de l'ordre de la demi microseconde.

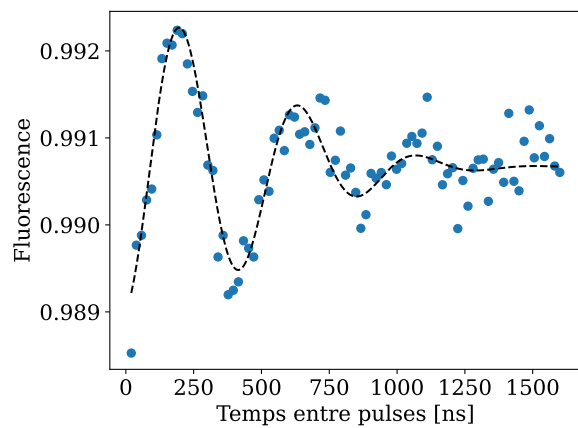


Figure 13: R  ponse des centres NV    la succession de deux pulses $\pi/2$. La puissance du signal microonde est alors de 28 dBm et sa fr  quence de 2.80185 GHz, la dur  e d'un pulse $\pi/2$ vaut alors 0.41 ns. La fluorescence est sond  e par des pulses laser d'une puissance de 1 mW.

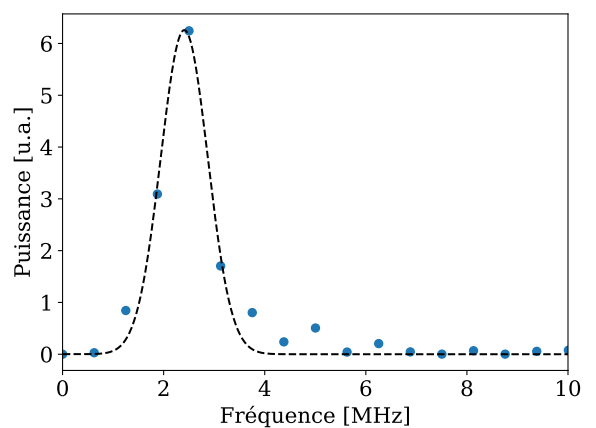


Figure 14: Transform  e de Fourier des franges de Ramsey pr  sent  es figure 13. On observe un pic de fr  quence centrale d'environ 2.4 MHz et de largeur    mi-hauteur de 1,1 MHz.