



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à ENS Paris

**Cross-relaxation in dense ensembles of NV centers and
application to magnetometry**

Soutenue par

Clément Pellet-Mary

Le 07 Décembre 2022

École doctorale n°564

EDPIF

Spécialité

Physique

Composition du jury :

Dmitry Budker Professor JGU Mainz	<i>Rapporteur</i>
Philippe Tamarat Professeur, Université de Bordeaux	<i>Rapporteur</i>
Maria Chamarro Professeure, Sorbonne Université	<i>Examineur</i>
Vincent Jacques Directeur de recherche, CNRS	<i>Examineur</i>
Alexandre Tallaie Directeur de recherche, CNRS	<i>Examineur</i>
Gabriel Hétet Maitre de conférence, ENS Paris	<i>Directeur de thèse</i>

RÉSUMÉ

Le centre NV du diamant est un candidat prometteur pour de nombreuses technologies quantiques, que ce soit pour les communications quantiques, le calcul quantique ou la métrologie quantique. Grâce aux progrès de synthèse du diamant, des échantillons contenant une haute concentration en centres NV sont aujourd'hui réalisables. Cette augmentation de la densité de centres NV s'accompagne d'une augmentation des interactions entre ces derniers, ce qui donne lieu à une physique complexe et encore largement inexplorée. De nombreuses applications récentes, telles que l'hyper-polarisation en RMN, la bio-imagerie ou encore la spin-mécanique repose sur des ensembles denses de centres NV. Comprendre et maîtriser les propriétés d'ensemble de ces derniers est un point crucial pour l'établissement de ces technologies.

Cette thèse étudie les échanges de polarisation, par relaxation croisée, entre des ensembles denses de centres NV, ainsi que les interactions entre les centres NV et d'autres impuretés paramagnétiques présentes dans le diamant. Le but de ces travaux est de mieux comprendre les propriétés des ensembles de centres NV, et d'exploiter certaines de ces propriétés pour de nouvelles applications telles que la détection d'impuretés ou la magnétométrie.

Dans un premier temps, nous détaillerons les propriétés des centres NV et nous introduirons des concepts liés à l'interaction dipolaire entre spins et aux relaxations croisées. Nous verrons ensuite comment les relaxations croisées peuvent être utilisées pour détecter optiquement des résonances de spins qui ne sont pas optiquement actifs, en l'occurrence les défauts VH^- et $War1$ dans des diamants CVD. Enfin nous étudierons les relaxations croisées entre différents sous-groupes de centre NV. Nous verrons d'abord leur influence sur la dynamique du spin et leur origine microscopique, puis nous étudierons leur dépendance avec le champ magnétique et leur potentielle utilisation pour la magnétométrie en champs faible.

MOTS CLÉS

centre NV, dynamique de spin, magnétométrie

ABSTRACT

The NV center in diamond is a promising candidate for emerging quantum technologies, including quantum communication, quantum computing and quantum metrology. Thanks to the recent progress in diamond synthesis, samples with high NV center concentration can now be created. This increase in the NV density comes with an increase of the interaction between them, which leads to a rich and complex physics. Numerous applications, such as NMR hyperpolarization, bio-imagery or spin mechanics rely on the use of dense NV ensembles. Understanding and mastering the properties of ensembles of NV centers will be a crucial point in the development of these technologies.

This doctoral thesis focuses on cross-relaxation between dense ensembles of NV centers, as well as on the interaction between NV centers and other diamond paramagnetic impurities. The aim of this work is to better understand the properties of dense NV centers ensembles, and to exploit them for new applications such as the detection of impurities and magnetometry.

In the first part, we will detail the properties of single NV centers and introduce notions regarding dipole-dipole spin coupling and cross-relaxations. We will then show how cross-relaxations can be used to optically detect dark spin resonances, in this case the VH^- and $War1$ defects in CVD-grown diamond. Finally, we will present a study of cross-relaxations between subgroups of NV centers. We will first cover the influence of cross-relaxation on the spin dynamics and discuss its microscopic origin. We will then investigate the role of the magnetic field on cross-relaxations as well as their potential use in low field magnetometry.

KEYWORDS

NV center, spin dynamics, magnetometry