Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés individuels dans le diamant ; application à la cryptographie quantique

Alexios Beveratos

N° d'ordre : 7128

INSTITUT D'OPTIQUE THÉORIQUE ET APPLIQUÉE

LABORATOIRE CHARLES FABRY

UNIVERSITÉ PARIS XI

U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

Spécialité : Optique et Photonique

présentée pour obtenir

le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES

DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY

par

Alexios Beveratos

Sujet :

RÉALISATION EXPÉRIMENTALE D'UNE SOURCE DE PHOTONS UNIQUES PAR FLUORESCENCE DE CENTRES COLORÉS DANS LE DIAMANT : APPLCATION À LA CRYPTOGRAPHIE QUANTIQUE

Soutenue le 20 décembre 2002 devant la Commission d'examen :

M. I. ABRAM	Rapporteur
M. J.F. ROCH	Rapporteur
M. N. GISIN	
M. J.P. GOEDGEBUER	
M. P. GRANGIER	
M. J.P. POIZAT	

Remerciements

Cette thèse a été effectuée dans le groupe d'Optique Quantique du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique. Je remercie le M. le Professeur André Ducasse et M. Pierre Chavel de m'y avoir accueilli.

De même, je suis très reconnaissant à M. Philippe Grangier de m'avoir reçu au sein de son équipe et d'avoir supervisé mon travail tout au long de ma thèse. Ses connaissances tant au niveau expérimentales que théoriques ainsi que ses talents pédagogiques m'ont permis de dégager rapidement les points essentiels et ainsi de faire évoluer rapidement mon montage expérimental. J'ai aussi énormément apprécié la liberté que j'ai eue en tant que thésard, ce qui m'a permis d'explorer toutes mes pistes de recherche.

J'ai également été encadré par M. Jean-Philippe Poizat avec qui j'ai partagé mon bureau pendant ces trois années de thèse. Ses questions critiques sur les résultats quotidiens m'ont souvent permis de me rendre compte d'éventuelles erreurs d'interprétations, ou bien d'approfondir une hypothèse de recherche pour mieux comprendre un phénomène observé.

Je voudrais remercier chaleureusement Mme Rosa Brouri pour m'avoir encadré au tout début de ma thèse. En effet, après cinq ans de physique "théorique", il n'est pas aisé de monter une manipulation en partant d'une table optique vide de tout composant. Elle possède aussi un don incomparable pour soutenir les thésards à bout de nerf lorsque l'expérience ne marche pas. Je souhaiterais également la remercier pour avoir vérifié mon manuscrit et proposé des remarques très constructives.

Pendant la thèse j'ai collaboré avec Thierry Gacoin pour réaliser les échantillons de nanocristaux de diamants. Sa maîtrise des dépôts de nanoparticules, a été déterminante dans la réalisation d'échantillons de très bonne qualité. Son enthouthiasme sur le sujet nous a permis d'obtenir rapidement le résultat attendu. Je remercie Anthony Machu et Marie-Françoise Ravet d'avoir effectué le recuit des échantillons dans leur four.

Le travail pendant ces trois années fut très agréable. D'ailleurs j'en remercie Nicolas et Georges pour m'avoir accepté dans leur salle d'expérience pendant mes longues heures d'acquisitions. Pendant près de 2 ans j'ai partagé ma salle d'expérience avec Jérôme, et ce fut très agréable, même si parfois mon côté n'était pas aussi rangé que le sien. Et enfin Frédéric pour les nombreux moments de détente que nous avons partagés lors de nos discussions.

J'ai eu également plaisir à travailler pendant six mois avec Sergei Kuhn sur ce sujet; sa collaboration nous a permis d'apporter des améliorations notables sur l'expérience.

Je souhaiterais remercier M. André Villing et Frédéric Moron pour les diverses réalisations électroniques sans les quelles cette thèse n'aurait pu aboutir. Je remercie Alain Aide pour ses réalisations de circuits électroniques ainsi que ses précieux conseils en mécanique.

Un grand merci au service de mécanique, d'optique et d'entretien du bâtiment, pour leur diverses interventions, ainsi qu'à Isabelle qui a assuré la reproduction de ce manuscrit en de nombreux exemplaires.

Beaucoup de difficultés expérimentales se sont trouvées aplanies grâce aux bonnes relations avec les groupes ELSA et Optique Atomique, qui m'ont aidé en nous prêtant du matériel. Je suis aussi reconnaissant à Robert Pansu de m'avoir prété pour deux ans son CTA qui me fut indispensable pour les expériences.

Je ne voudrais pas oublier Vahid Sandogdar, Olivier Benson et Thomas Aichele de l'Université de Constance qui m'ont accueilli pendant une semaine afin d'effectuer les expériences à basse température. Je remercie également John Rarity, Harald Weinfurter et Christian Kurtsiefer pour m'avoir convié aux expériences de cryptographie quantique sur le Zugspitze en Allemagne. Les discussions avec John Rarity ont enrichi la réalisation de cette thèse.

Je remercie aussi Jean-François Roch et François Treussart pour la collaboration sur le sujet, l'échange d'idées, d'échantillons et de résultats.

Les Travaux pratiques d'Electronique que j'ai donnés à l'Institut d'Optique ont développé mon goût pour l'enseignement. Je remercie Fabienne Bernard de m'avoir donné ce poste d'enseignement, et de m'avoir confié des responsabilités stimulantes.

Je tiens aussi à remercier Izo Abram et Jean-François Roch d'avoir été mes rapporteurs, ainsi que Nicolas Gisin et Jean-Pierre Goedgebuer qui m'ont fait l'honneur de faire partie de mon jury.

Enfin, je voudrais remercier Christine de m'avoir soutenu tout au long de ma thèse, ainsi que mes parents pour m'avoir aidé dans mes études.

Table des matières

Introduction

La confidentialité des communications est d'importance stratégique tant au point de vue militaire qu'économique. Pour assurer la confidentialité, les interlocuteurs doivent rendre le message incompréhensible aux yeux d'un espion. Cette technique s'appelle la cryptographie, des mots grecs "$\kappa\rho\upsilon\pi\tau\omega$ (crypto)", qui veut dire cacher, et "$\gamma\rho\alpha\phi\eta$ (graphie)", l'écriture. C'est donc l'art de cacher un écrit.

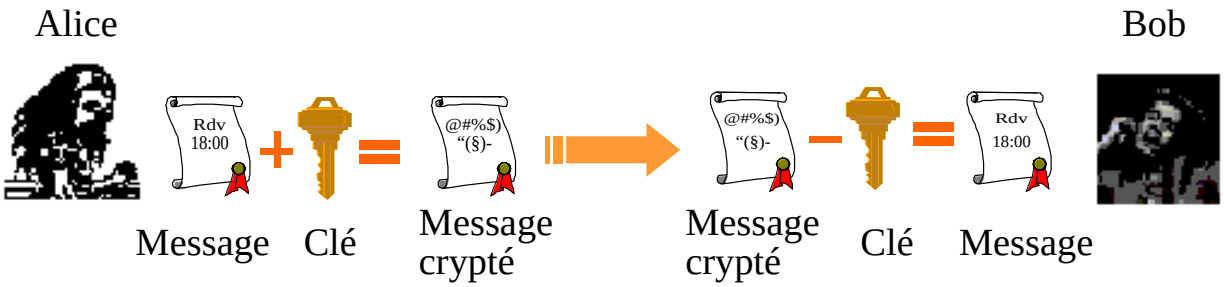


Figure 1: *Principe de la cryptographie*

Le principe de base est toujours le même quelque soit la technologie utilisée (voir figure 1). Un premier correspondant (nommé Alice) code son message à l'aide d'une clé. Il en résulte un message crypté, non lisible par l'espion, qu'Alice envoie à Bob. Celui-ci, à l'aide de sa clé, déchiffre le message, et est capable de lire le contenu. En fonction de l'algorithme utilisé, les clés d'Alice et de Bob peuvent être identiques ou différentes. La confidentialité est garantie par le fait que l'espion, appelé Eve[1], n'est pas en possession de la clé de déchiffrage. Il est admis que la sécurité d'un système de cryptage ne doit pas dépendre de la préservation du secret de l'algorithme, mais seulement du secret de la clé [1].

Depuis le début de la cryptographie[2] on assiste à une escalade entre cryptographes et casseurs de codes. Le protocole cryptographique utilisé entre Alice et Bob doit bien sûr être changé lorsqu'il ne résiste plus aux attaques d'Eve.

Considérons par exemple le code de substitutions de César (ainsi que ses variantes), où l'on remplace l'alphabet usuel par un alphabet chiffré constitué de symboles arbitraires. Un ennemi qui veut décrypter le message doit essayer un très grand nombre de combinaisons différentes. Cette opération est fastidieuse, et le code paraît très robuste. Mais une faille importante de cet algorithme a été découverte au IX^{e} siècle : il suffit d'analyser la fréquence d'apparition de chacune des lettres dans le texte codé, et de la comparer avec la fréquence d'apparition des lettres dans la langue du message. En utilisant cette méthode statistique simple, il est facile de décrypter le message.

[1] En anglais le mot Eavesdropper désigne celui qui écoute aux portes

[2] Les premières méthodes cryptographiques connues remontent à la Grèce antique

Plusieurs systèmes de codage se sont succédés sur les quelques 2000 ans d'existence de la cryptographie. On peut décomposer les algorithmes de cryptographie en deux grandes classes : la cryptographie symétrique, où les deux interlocuteurs (Alice et Bob) possèdent la même clé pour coder et décoder le message, et la cryptographie asymétrique, où la clé de codage est différente de la clé de décodage.

Le codage avec une clé symétrique impose la contrainte que les deux interlocuteurs doivent s'échanger au préalable la clé secrète. Or ceci ne peut se faire en toute sécurité que si Alice et Bob se rencontrent.

La mise au point de la cryptographie à clé publique a permis de résoudre ce problème. Cette méthode fait partie des algorithmes de cryptographie asymétrique. Non seulement la clé de codage est différente de celle de décodage, mais elle peut être rendue publique. Seule la clé de décryptage doit rester secrète. Alice peut alors récupérer la clé publique de Bob dans un annuaire, crypter son message et l'envoyer par n'importe quel canal classique (courrier, e-mail, émission radio, etc ...). Seul Bob est capable de décrypter le message.

Le code RSA inventé en 1977 par R. Rivest, A. Shamir et L. Adleman est un code de cryptographie à clé publique. Il est basé sur les propriétés mathématiques de la multiplication modulo un nombre entier. Le principe de fonctionnement de l'algorithme est le suivant (pour un message envoyé d'Alice à Bob)

- Bob choisit deux nombres premiers p et q
- Il calcule $N = p \times q$, et choisit un deuxième nombre e qui n'a aucun facteur commun avec $(p-1) \times (q-1)$. Il calcule aussi le nombre d tel que $e \times d = 1$ modulo $(p-1) \times (q-1)$
- Bob diffuse N et e, qui constituent la clé publique.
- Pour crypter un message (M), Alice transforme son message en un nombre M (ou une série de nombres), et applique l'opération suivante : $C = M^e$ modulo N.
- Pour décrypter le message Bob utilise la formule suivante : $M = C^d$ modulo N

Cet algorithme est vite devenu une norme en communication électronique. Le protocole SSL (Secure Socket Layer) couramment utilisé pour les transactions sur Internet repose sur RSA. Les sites qui l'utilisent sont en général les sites d'achat en ligne pour crypter le numéro de carte bancaire, ou bien les sites de banque en ligne pour consulter des comptes. Bien sûr on peut aussi l'utiliser pour crypter les communications e-mail, et il peut aussi servir pour authentifier la provenance d'un message.

Cependant la sécurité de l'algorithme repose sur une conjecture mathématique, qui stipule qu'il est très difficile de calculer les nombres premiers p et q à partir de N. Cette conjecture a été établie à partir des propriétés mathématiques des meilleurs algorithmes de factorisation connus, et de la puissance de calcul des ordinateurs. Néanmoins, il n'est pas prouvé que les algorithmes de factorisation actuels soient optimaux. Quant à la puissance des ordinateurs, elle double tous les 18 mois (Loi de Moore). Des clés de plus en plus grandes ont ainsi été factorisées. Le tableau 1 [2] résume les dates auxquelles la clé RSA a été factorisée en fonction de sa taille (nombre de chiffres). Ainsi, la clé RSA-155 (ce qui correspond à une clé de 512 bits) a été factorisée en l'équivalent de 35 années de calcul avec 300 stations de travail ainsi que des machines SGI et SUN[3], mais le calcul n'a duré que quelques mois. Actuellement on ne considère comme étant sûres que les clés de 1024 bits (soit environ 308 chiffres) au minimum. On peut prévoir, en extrapolant l'évolution observée, que cette clé sera factorisée en 2038 au plus tard.

[3] Machines multiprocesseurs

RSA - #	Année
100	04 / 1991
110	04 / 1992
120	06 / 1993
129	04 / 1994
130	10 / 1996
140	02 / 1999
155	08 / 1999

Tableau 1: *Date de factorisation des clés RSA*

Une autre voie pour factoriser les grands nombres vient du côté des ordinateurs quantiques. Bien qu'ils soient encore des sujets d'étude de physique fondamentale, des algorithmes efficaces pouvant tourner sur de tels ordinateurs existent déjà comme par exemple l'algorithme de Shor [3]. Il a été prouvé qu'en utilisant cet algorithme sur un ordinateur quantique, le temps de factorisation n'augmenterait plus de façon exponentielle en fonction de la taille de la clé, comme c'est la cas avec un ordinateur classique, mais seulement de façon polynomiale. Ainsi des clés qui sont considérées inviolables actuellement n'apporteraient plus aucune sécurité face à un ordinateur quantique. Une première approximation d'ordinateur quantique qui factorise le nombre 15 a été publiée en 2001 [4].

En conclusion, l'algorithme RSA a réussi à simplifier les communications cryptées. Sa simplicité de mise en œuvre repose sur le fait qu'aucun échange de clé secrète n'a lieu. Pourtant il ne garantit pas une sécurité absolue de la communication, puisqu'il repose sur des conjectures mathématiques non prouvées.

Les codes actuels de cryptographie à clé publique ne garantissent donc pas une sécurité absolue, et dans un futur proche, il faudra les remplacer par un algorithme plus fiable. On peut se retourner vers les codes à clé secrète, comme par exemple, le code de Vernam (appelé aussi "one time pad") introduit en 1917. A la différence de la cryptographie à clé publique, il ne repose sur aucune complexité algorithmique. En 1949 [5] C. Shannon démontra que l'algorithme est inconditionnellement sûr à deux conditions : il faut choisir une clé aléatoire aussi longue que le message à coder, et il ne faut l'utiliser qu'une seule fois. L'algorithme est le suivant :

Pour tranmettre un message binaire (M), Alice et Bob disposent d'une clé secrète aléatoire (K), connue d'eux seuls, et aussi longue que le message. Pour coder le message Alice applique un "ou Exclusif" $\oplus$ entre le message et la clé $M \oplus K = M_c$. Elle peut maintenant diffuser le message crypté par n'importe quel moyen à sa convenance. Bob de son côté reçoit le message crypté et applique de nouveau un "ou exclusif" entre le message crypté et la même clé, ce qui reconstitue le message original $M_c \oplus K = (M \oplus K) \oplus K = M$, puisque $K \oplus K = 0$.

La sécurité absolue de cet algorithme repose sur le fait que la clé secrète est aléatoire et n'est utilisée qu'une seule fois. En effet si un espion intercepte deux messages codés avec la même clé, il est capable de restituer la somme des deux messages originaux en appliquant de nouveau un ou exclusif, cette fois entre les deux messages cryptés :

$$(A \oplus K) \oplus (B \oplus K) = (A \oplus B) \oplus (K \oplus K) = (A \oplus B) \tag{1}$$

Il est donc primordial de n'utiliser qu'une seule fois la clé de codage. Notons que cet algorithme est largement utilisé au niveau diplomatique ou militaire, mais nécessite l'échange permanent de nouvelles clés. Il faut donc confier cette tache à une troisième personne. Toute la faille de sécurité provient de cette personne, car elle peut faire une copie de la clé sans laisser de trace.

En conclusion, on possède d'un côté un algorithme de clé publique, qui ne nécessite pas l'échange de clé secrète, mais dont la sécurité absolue n'est pas garantie. De l'autre côté, il existe un algorithme prouvé infaillible, mais qui demande l'échange d'une clé secrète entre les deux interlocuteurs.

Une question se pose donc : comment échanger une clé secrète, sans qu'un espion puisse prendre connaissance de son contenu ? La réponse ne semble pas triviale, mais il suffit de la poser différemment pour se rendre compte que l'on possède déjà tous les outils pour parvenir à l'échange confidentiel. Ainsi on peut se demander : comment savoir qu'un espion a essayé de copier la clé ? La solution est apportée par les lois fondamentales de la mécanique quantique, qui stipulent que toute observation d'un état quantique le perturbe. Mais l'espion, au lieu de lire directement l'information, peut tenter de faire une copie du système quantique, pour ensuite effectuer sa mesure, en espérant ainsi passer inaperçu. Or cette manipulation est interdite par la mécanique quantique. Plus précisément, le théorème de non-clonage stipule qu'il n'est pas possible de copier parfaitement un état quantique, sans connaître la base dans laquelle il a été préparé [6].

Dans les années 60 [7], Stephen Weisner proposa la création de billets de banque infalsifiables suivant les deux théorèmes énoncés précédemment. Il n'a malheureusement pas été pris au sérieux. Il a fallu attendre 1984 pour que Bennett et Brassard reprennent son idée originale, et l'appliquent à la distribution de clé quantique. Ce protocole, connu sous le sigle de "BB84", garantit l'échange en toute confidentialité d'une clé secrète de taille arbitraire. Il est alors possible à Alice et Bob de communiquer en toute confidentialité, en codant leurs messages avec le code de Vernam.

Depuis la première proposition en 1984 [8] et la première démonstration expérimentale en 1992 [9], les systèmes de distribution de clé quantique (Quantum Key Distribution, ou QKD) ont beaucoup progressé. De nombreuses réalisations expérimentales ont vu le jour [10] et il existe même un prototype commercial [11]. Néanmoins, la plupart de ces réalisations de QKD reposent sur des impulsions cohérentes atténuées, qui ne sont qu'une approximation d'une source de photons uniques, requise en principe par BB84. La présence d'impulsions contenant plus de deux photons ouvre une voie d'attaque à un éventuel espion. La confidentialité de la communication peut néanmoins être préservée, à condition d'atténuer de plus en plus l'impulsion initiale, au fur et à mesure que les pertes en ligne sont plus importantes. Ainsi, soit le taux de transmission tend vers zéro, soit la sécurité n'est plus garantie [12, 13] [4]. L'utilisation d'une source efficace de photons uniques améliorerait donc de façon significative les performances de la cryptographie quantique, en particulier lorsque les pertes en ligne sont très grandes, comme dans les communications entre une base terrestre et un satellite [14].

L'objectif de cette thèse est de créer un prototype de cryptographie quantique utilisant une source de photons uniques. Le manuscrit s'organise de la façon suivante :

Dans le chapitre 1, nous présenterons une étude théorique d'une source de photons uniques basée sur l'excitation impulsionnelle d'un dipôle émetteur unique. Nous montrerons qu'une telle source présente un avantage quantitatif non négligeable par rapport aux sources cohérentes atténuées, le facteur de comparaison étant le taux d'impulsions contenant plus d'un photon.

Puis dans le chapitre 2 nous donnerons les propriétés du centre coloré "NV" ("Nitrogen-Vacancy") dans le diamant, qui est le dipôle unique que nous utiliserons tout au long de la thèse. Nous décrirons ensuite le montage expérimental que nous avons mis en place pour isoler optiquement ce dipôle unique, ainsi que le système de détection qui permet d'analyser la lumière de fluorescence provenant du dipôle.

[4] Nous y reviendrons plus en détail au dernier chapitre

Le chapitre 3 sera consacré à l'étude du centre NV sous excitation continue, pour valider sa candidature entant que source de photons uniques. Les mesures photophysiques montrent que ce dipôle pourra constituer une source efficace de photons uniques, fonctionnant à température ambiante.

L'étude du dipôle sous excitation impulsionnelle sera traitée dans le chapitre 5. On décrira le laser impulsionnel que nous avons mis en place, puis les résultats obtenus. La source de photons uniques ainsi mise au point présente une réduction d'un facteur 14 du nombre d'impulsions contenant deux photons ou plus, par rapport à une source cohérente atténuée équivalente contenant le même nombre moyen de photons par impulsion.

Finalement, dans le chapitre 6, nous allons utiliser cette source dans un montage de cryptographie quantique que nous avons réalisé. Ce système nous a permis de transmettre une clé secrète sur une distance de 50 m, à une cadence de 5860 bits secrets par seconde.

Chapitre 1

Source de photons uniques

La source de photons uniques est un élément clé dans beaucoup d'utilisations potentielles de l'information quantique. Par exemple, un ensemble de telles sources, associé à des éléments d'optique linéaire (lames séparatrices) et de photodétecteurs, pourrait être utilisé pour réaliser un ordinateur quantique [15]. L'idée physique la plus simple pour réaliser une source émettant les photons "à la demande" est d'utiliser une excitation impulsionnelle d'un système quantique à deux niveaux[1] [18, 19]. Pour chaque impulsion d'excitation, le système émet un et un seul photon. Idéalement, la source de photons uniques doit avoir les caractéristiques suivantes :

- Un taux de répétition élevé, et donc une courte durée de vie du dipôle émetteur.
- Une grande efficacité quantique, toutes les impulsions d'excitation étant alors transformées en photons uniques.
- Une émission des photons dans un seul mode spatial avec une polarisation définie
- Une largeur spectrale égale à la transformé de Fourier de la durée de l'impulsion.
- Et bien sûr un et un seul photon à la fois.

Pour la cryptographie quantique, la condition sur la largeur spectrale n'est pas exigée. Néanmoins, un spectre fin permet de mieux isoler la lumière provenant du système quantique par rapport au bruit environnant. La longueure d'onde d'émission devra être adaptée au milieu de propagation. En vue d'applications, on exige aussi du système d'être stable dans le temps, simple d'utilisation, et de préférence peu cher.

1.1 Production de photons uniques

Considérons le principe physique le plus simple pour réaliser une source de photons uniques, qui est d'exciter un dipôle unique avec une impulsion laser. Essayons tout d'abord de préciser intuitivement les caractéristiques des impulsions qu'il faut utiliser pour réaliser une telle source, synchronisée sur une horloge externe. Le système à deux niveaux, qui est initialement dans l'état fondamental, est porté dans l'état excité par l'impulsion. Il y reste en moyenne pendant la durée de vie du niveau excité, puis retombe vers l'état fondamental en émettant un photon. Il restera dans cet état fondamental jusqu'à la prochaine impulsion. Il est alors clair que la durée de vie de l'émetteur doit être

[1] Nous considérons ici une excitation laser, mais il existe aussi des propositions utilisant une excitation électronique [16] ou bien un passage adiabatique vers le niveau excité [17]

grande devant la durée de l'impulsion, mais courte devant l'intervalle entre impulsions successives. En notant δT la durée de l'impulsion d'excitation, T la séparation entre deux impulsions successives, et Γ^{-1} la durée de vie de l'émetteur, on doit donc avoir : $\Gamma\delta T \ll 1$ et $\Gamma T \gg 1$. Nous allons maintenant retrouver ces conditions de manière quantitative.

1.1.1 Taux de fuite d'information

On va se placer, pour le reste du chapitre, dans le cadre spécifique de la cryptographie quantique. Dans ce cadre, la quantité importante pour une source de photons uniques, est avant tout le nombre d'impulsions contenant plus d'un photon. En effet, nous montrerons dans le chapitre 6 que toute impulsion contenant deux photons (ou plus) représente une fuite possible d'information. Afin de quantifier la qualité d'une source basée sur l'excitation impulsionnelle d'un dipôle unique, nous allons établir la formule qui prédit le nombre d'impulsions contenant plus d'un photon, en fonction de la largeur de l'impulsion d'excitation [2].

On définit le facteur du taux de fuite d'information vers l'espion f_{il} (fractional information leakage) par

$$f_{il} = \frac{P_{n\geq 2}}{P_{n\geq 1}} \tag{1.1}$$

où $P_{n\geq 1}$ et $P_{n\geq 2}$ sont les probabilités d'obtenir au moins un et au moins deux photons par impulsion respectivement. Expérimentalement on voudrait avoir $f_{il} \approx 0$ tout en ayant une probabilité $P_e = P_{n\geq 1}$ d'émettre un photon proche de l'unité. Pour une source poissonnienne, la probabilité d'avoir n photons dans une impulsion s'écrit :

$$P_n = e^{-\mu}\frac{\mu^n}{n!} \tag{1.2}$$

où μ est le nombre moyen de photons. On obtient alors $P_e = 1 - e^{-\mu}$ et donc $e^{-\mu} = 1 - P_e$ et $\mu = -ln(1 - P_e)$. On peut écrire la formule 1.1 pour une source poissonnienne :

$$\begin{aligned} f_{il} &= \frac{P_e - e^{-\mu}\mu}{P_e} && (1.3)\\ &= 1 - (1 - P_e)\frac{\mu}{P_e} && (1.4)\\ &= 1 - \left(1 - P_e^{-1}\right) ln\,(1 - P_e) \approx \frac{P_e}{2} && (1.5) \end{aligned}$$

Cette dernière approximation n'est valable que pour $P_e \ll 1$. Pour rendre le facteur f_{il} petit, il faut diminuer la probabilité P_e d'avoir au moins un photon. Il est donc clair qu'on ne peut pas simultanément avoir un photon avec une probabilité proche de un, et deux photons avec une probabilité proche de zéro. Au contraire, avec une source de photons uniques basée sur l'excitation d'un dipôle, on peut avoir un f_{il} plus faible, sans concession sur la probabilité d'émettre un photon.

1.1.2 Quelques définitions

Nous allons considérer un système à deux niveaux, $|1\rangle$ étant l'état fondamental et $|2\rangle$ l'état excité. On note r le taux de pompage, et Γ le taux d'émission spontanée. Nous allons décrire l'évolution du

[2] Ce calcul est publié dans la référence [20]

système par des équations de taux (sans cohérences), qui sont adaptées aux systèmes expérimentaux (molécules, centres colorés) que nous considérons par la suite.

On note $\sigma_{bb}(t, t_0; a)$ la population de l'état b à l'instant t, sachant qu'au temps t_0 le système était dans l'état a (a et b peuvent valoir 1 ou 2). On définit la probabilité $\sigma_{bb}^{(n)}(t, t_0; a)$ d'aller de l'état $|a\rangle$ au temps t_0 à l'état $|b\rangle$ au temps t, en émettant exactement n photons. On peut lier ces deux quantités par l'équation :

$$\sigma_{bb}(t, t_0; a) = \sum_{n=0}^{\infty} \sigma_{bb}^{(n)}(t, t_0; a) \tag{1.6}$$

Puisque la quantité $\sigma_{22}^{(0)}(t, t_0; a)$ donne la probabilité d'être dans l'état $|2\rangle$ sans avoir émis de photons, on peut définir la densité de probabilité d'émettre un et un seul photon à l'instant t lorsque le système est dans l'état a à l'instant t_0 par

$$p_1 = \Gamma \sigma_{22}^{(0)}(t, t_0; a) \tag{1.7}$$

On peut alors écrire une condition de récurrence pour la quantité $\sigma_{bb}^{(n)}(t, t_0; a)$:

$$\sigma_{bb}^{(n+1)}(t, t_0; a) = \int_{t_0}^{t} \Gamma \sigma_{22}^{(n)}(t', t_0; a) \sigma_{bb}^{(0)}(t, t'; 1) dt' \tag{1.8}$$

Cette équation décrit simplement le fait que pour émettre $n+1$ photons, le système doit émettre $n+1$ photons jusqu'à l'instant t' $\left[\Gamma \sigma_{22}^{(n)}(t', t_0; a)\right]$ et aucun de t' à t $\left[\sigma_{bb}^{(0)}(t, t'; 1)\right]$. Dans le dernier terme le système est nécessairement dans l'état 1 puisqu'un photon vient d'être émis.

1.1.3 Efficacité de collection unité

Nous allons dériver, dans un premier temps, la probabilité d'émettre un ou plusieurs photons pour une efficacité de collection unité. Nous introduirons par la suite une efficacité de collection inférieure à un. Les équations d'évolution des quantités $\sigma_{22}^{(0)}$ et $\sigma_{11}^{(0)}$ s'écrivent :

$$\dot{\sigma}_{22}^{(0)} = r\sigma_{11}^{(0)} - \Gamma \sigma_{22}^{(0)} \tag{1.9}$$

$$\dot{\sigma}_{11}^{(0)} = -r\sigma_{11}^{(0)} \tag{1.10}$$

On remarque que par rapport à un système d'équations à deux niveaux usuel, on a oté le terme $+\Gamma\sigma_{22}^{(0)}$, puisque le passage de l'état $|2\rangle$ vers l'état $|1\rangle$ est accompagné de l'émission d'un photon, alors que la quantité $\sigma_{11}^{(0)}$ décrit la population de l'état $|1\rangle$ sans émission de photon. On peut facilement résoudre ce système avec le dipôle dans l'état $|1\rangle$ comme condition initiale. On obtient :

pour $t \leq \delta T$:

$$\sigma_{11}^{(0)}(t, t_0; 1) = \exp[-r(t - t_0)] \tag{1.11}$$

$$\sigma_{22}^{(0)}(t, t_0; 1) = = \frac{r}{r - \Gamma} \left(\exp[-\Gamma(t - t_0)] - \exp[-r(t - t_0)]\right) \tag{1.12}$$

et pour $t \geq \delta T$

$$\sigma_{11}^{(0)}(t, t_0; 1) = \sigma_{11}^{(0)}(\delta T, t_0; 1) \quad (1.13)$$
$$\sigma_{22}^{(0)}(t, t_0; 1) = \exp[-\Gamma(t - \delta T)]\sigma_{22}^{(0)}(\delta T, t_0; 1) \quad (1.14)$$

Ainsi la probabilité d'émettre au moins un photon entre deux impulsions d'excitation (intervalle de temps [0,T]) s'écrit :

$$\begin{aligned} P_e^{(g)} &= \Gamma \int_0^T \sigma_{22}^{(0)}(t, 0; 1)dt \\ &= 1 - \exp(-r\delta T) - \frac{r}{r - \Gamma} \exp(-\Gamma T) \times [1 - \exp((\Gamma - r)\delta T)] \end{aligned} \quad (1.15)$$

En attendant suffisamment longtemps, le système finit toujours par émettre un photon et retomber dans l'état fondamental. Pour $T \gg \Gamma^{-1}$, l'équation 1.15 devient donc :

$$P_e^{(g)} \approx 1 - \exp(-r\delta T) \quad (1.16)$$

La probabilité d'émettre un photon ne dépend alors que de la puissance d'excitation pour une durée d'impulsion donnée. Ainsi en excitant suffisamment fort et en espaçant les impulsions d'excitation, on obtient avec une probabilité unité, un photon après chaque impulsion d'excitation. On peut aussi déduire la probabilité de n'émettre que n photons par l'équation

$$\begin{aligned} P_n^{(g)} &= \int_0^T dt \left\{1 - [P_e^{(g)}]_t^T\right\} \times \Gamma\sigma_{22}^{(n-1)}(t, 0; 1) \\ &= \int_0^T dt \left\{1 - \Gamma \int_t^T \sigma_{22}^{(0)}(t', t; 1)dt'\right\} \Gamma\sigma_{22}^{(n-1)}(t, 0; 1) \end{aligned} \quad (1.17)$$

Dans cette équation, le terme $\Gamma\sigma_{22}^{(n-1)}(t, 0; 1)$ donne la probabilité d'émettre n photons entre [0,t], l'autre terme étant la probabilité de n'émettre aucun photon dans l'intervalle [t,T]. Dans la limite $exp(-\Gamma T) \to 0$ la probabilité d'émettre un et un seul photon est donnée par :

$$P_1^{(g)} = (\frac{r}{r - \Gamma})^2[\exp(-\Gamma\delta T) - \exp(-r\delta T)] - \frac{\Gamma r\delta T}{r - \Gamma} \exp(-r\delta T) \quad (1.18)$$

Le facteur f_{il} s'écrit en fonction de ces paramètres, en supposant qu'on détecte toujours un photon s'il est émis :

$$f_{il} = \frac{P_e^{(g)} - P_1^{(g)}}{P_e^{(g)}} \quad (1.19)$$

Sur la courbe (fig. 1.1) nous avons représenté le facteur f_{il} en fonction de la probabilité d'émettre un photon $P_e^{(g)}$. Si $P_e^{(g)} < 1$ le laser n'est pas suffisamment puissant pour exciter le système de manière efficace. Cette courbe donne un critère sur la largeur de l'impulsion du laser impulsionnel que nous devrons mettre en œuvre. Ainsi les conditions typiques sur les caractéristiques de l'excitation impulsionnelle sont :

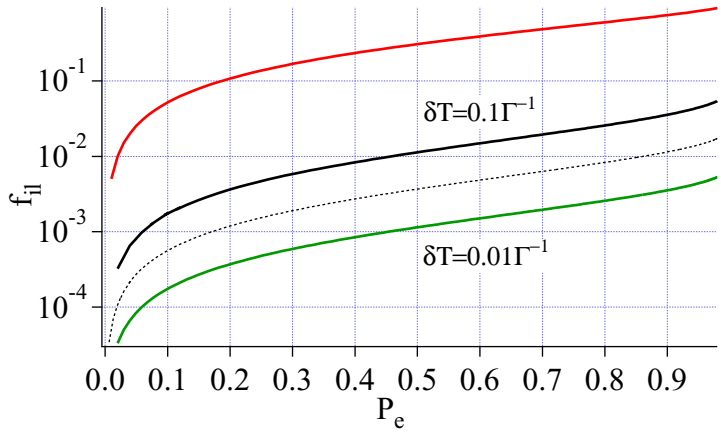


Figure 1.1: *Facteur f_{il} pour une source poissonnienne, et une source de photons uniques excitée par un laser de largeur d'impulsion $0.1\Gamma^{-1}$ et $0.01\Gamma^{-1}$. Le trait pointillé indique la valeur de f_{il} pour notre réalisation expérimentale $\delta T = 0.032\Gamma^{-1}$ (voir chap. 5)*

- $T \approx 6 \times \Gamma^{-1}$ afin d'obtenir $exp(-\Gamma T) \ll 1$
- $\delta T < 0.1\Gamma^{-1}$

Pour une durée de vie $\Gamma^{-1} = 11$ ns les conditions se traduisent par un taux de répétition maximal de 15 MHz, et une largeur d'impulsion maximale de 1 ns.

1.1.4 Efficacité de collection imparfaite

Nous allons maintenant traiter le cas d'une efficacité de collection imparfaite. Ceci est important, car dans la définition que nous avons donnée dans la section 1.1.3, on a supposé que l'émission d'un photon était toujours accompagnée de sa détection. Ceci n'est pas le cas expérimentalement.

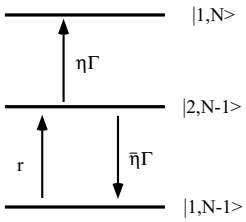


Figure 1.2: *Système à deux niveaux pour une efficacité de détection imparfaite. 1 et 2 représentent respectivement l'état fondamental et l'état excité, et N le nombre de photons détectés.*

Notons η l'efficacité de collection, et $\bar{\eta} = 1 - \eta$. Nous pouvons écrire à nouveau le système d'équations 1.10 en tenant compte du fait que le système peut maintenant se désexciter de l'état $|2\rangle$ vers l'état $|1\rangle$, sans que l'on détecte le photon qui a été émis (fig.1.2). Introduisons la probabilité $\tilde{\sigma}_{aa}$ d'arriver à l'état $|a\rangle$ sans collecter de photon :

$$\tilde{\sigma}_{aa} = \sum_{n=0}^{\infty} \bar{\eta}^n \sigma_{aa}^{(n)} \tag{1.20}$$

On peut alors écrire les équations differentielles régissant l'évolution des populations $\tilde{\sigma_{aa}}$ entre les états $|1,N\rangle$ et $|2,N\rangle$, c'est-à-dire sans détecter de photon [20] :

$$\dot{\tilde{\sigma}}_{22} = r\tilde{\sigma}_{11} - \Gamma\tilde{\sigma}_{22} \quad (1.21)$$

$$\dot{\tilde{\sigma}}_{11} = -r\tilde{\sigma}_{11} + \bar{\eta}\Gamma\tilde{\sigma}_{22} \quad (1.22)$$

D'après la définition de $P_n^{(g)}$ (eq.1.17) on peut définir la quantité $\Pi_0^{(g)}$, probabilité de ne collecter aucun photon dans l'intervalle $[0, T]$:

$$\Pi_0^{(g)} = \sum_{n=0}^{\infty} \bar{\eta}^n P_n^{(g)} \quad (1.23)$$

que l'on peut ré-écrire en termes de $\tilde{\sigma}_{11}$ et $\tilde{\sigma}_{22}$ solutions du système d'équations différentielles (1.21,1.22) dans l'intervalle [0,T], dans la limite $e^{-\Gamma T} \to 0$:

$$\Pi_0^{(g)} = \tilde{\sigma}_{11}(\bar{\eta}; T, 0; 1) = \bar{\eta}\tilde{\sigma}_{22}(\bar{\eta}; \delta T, 0; 1) + \tilde{\sigma}_{11}(\bar{\eta}; \delta T, 0; 1) \quad (1.24)$$

avec

$$\tilde{\sigma}_{11}(\bar{\eta}; \delta T, 0; 1) = \frac{r-\Gamma'}{r'-\Gamma'}e^{-r'\delta T} + \frac{r'-r}{r'-\Gamma'}e^{-\Gamma'\delta T} \quad (1.25)$$

$$\tilde{\sigma}_{22}(\bar{\eta}; \delta T, 0; 1) = \frac{r}{r'-\Gamma'}\left[e^{-\Gamma'\delta T} - e^{-r'\delta T}\right] \quad (1.26)$$

On définit Γ' et r' par :

$$r' = \frac{1}{2}(\Gamma + r + \sqrt{(r-\Gamma)^2 + 4\bar{\eta}r\Gamma}) \quad (1.27)$$

$$\Gamma' = \frac{1}{2}(\Gamma + r - \sqrt{(r-\Gamma)^2 + 4\bar{\eta}r\Gamma}) \quad (1.28)$$

On peut ainsi définir la probabilité de collecter au moins un photon $\Pi_e^{(g)} = 1 - \Pi_0^{(g)}$, ainsi que la probabilité de ne collecter qu'un seul photon :

$$\Pi_1^{(g)} = \sum_{n=1}^{\infty} n\eta\bar{\eta}^{n-1}P_n^{(g)} = \eta\frac{\partial\Pi_0^{(g)}}{\partial\bar{\eta}} \quad (1.29)$$

que l'on peut ré-écrire :

$$\begin{aligned}\Pi_1^{(g)} = {} & \frac{\eta r}{r'-\Gamma'}(1 + \frac{\Gamma(2\eta r - r - \Gamma}{(r'-\Gamma')^2})\left(\exp(-\Gamma'\delta T) - \exp(-r'\delta T)\right) \\ & + \frac{\eta r\Gamma\delta T}{r'-\Gamma'}\left(\frac{r'-\eta r}{r'-\Gamma'}\exp(-\Gamma'\delta T) + \frac{\Gamma'-\eta r}{r'-\Gamma'}\exp(-r'\delta T)\right)\end{aligned} \quad (1.30)$$

Avec $\eta = 1$ on retrouve les résultats de la section 1.1.3.

Intuitivement, si la largeur de l'impulsion est faible, la probabilité d'émettre 3 photons ou plus par impulsion est négligeable. On suppose donc qu'on a au maximum deux photons par impulsion. On obtient :

$$P_0^{(g)} + P_1^{(g)} + P_2^{(g)} = 1 - P_e^{(g)} + P_1^{(g)} + P_2^{(g)} \approx 1 \tag{1.31}$$

Dans ces conditions on peut ré-écrire l'équation 1.23 (la probabilité de ne détecter aucun photon):

$$\Pi_0^{(g)} = 1 - P_e^{(g)} + \bar{\eta} P_1^{(g)} + \bar{\eta}^2 (P_e^{(g)} - P_1^{(g)}) \tag{1.32}$$

et l'équation 1.29 :

$$\Pi_1^{(g)} = \eta (P_1^{(g)} + 2\bar{\eta}(P_e^{(g)} - P_1^{(g)})) \tag{1.33}$$

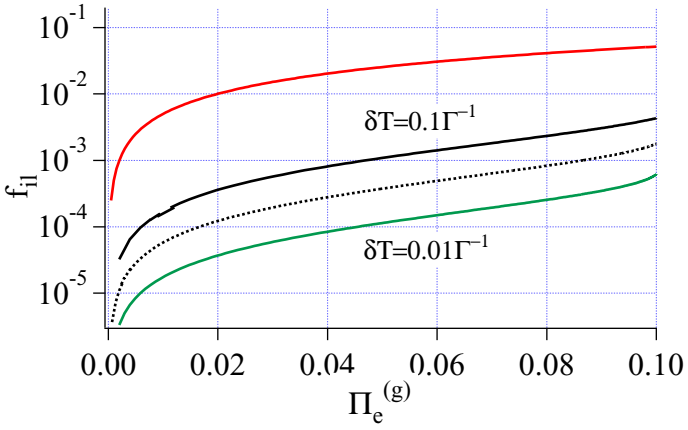


Figure 1.3: *Facteur f_{il} pour une source poissonnienne, et une source de photons uniques excitée par un laser de largeur d'impulsion $0.1\Gamma^{-1}$ et $0.01\Gamma^{-1}$. Le trait pointillé indique la valeur de f_{il} pour notre réalisation expérimentale $\delta T = 0.032\Gamma^{-1}$ (voir chap 5). L'efficacité de collection vaut $\eta = 0.1$*

Sur la figure 1.3 nous avons tracé le facteur f_{il} pour une largeur d'excitation $\delta T = 0.1\Gamma^{-1}$ et $\delta T = 0.01\Gamma^{-1}$ en fonction de la probabilité de détecter un photon $\Pi_e^{(g)}$ avec une efficacité de collection de $\eta = 0.1$.

Les conditions sur le laser impulsionnel ne sont pas modifiées. Le traitement du facteur f_{il} en tenant compte de l'efficacité de collection permet d'estimer correctement le nombre d'impulsions contenant deux photons. Les taux de fuite d'information vérifient $f_{il}^{P_e^{(g)}=0.1} \neq f_{il}^{\Pi_e^{(g)}=0.1}$ car dans le premier cas, on n'excite pas suffisamment le système quantique, d'où la probabilité $P_e^{(g)} = 0.1$, tandis que dans le deuxième cas, on excite à saturation le système quantique, mais on ne collecte qu'une partie des photons.

1.1.5 Facteur de mérite

Sur la figure 1.4, on a reporté la probabilité de détecter au moins un photon ainsi que le facteur f_{il} en fonction de la puissance d'excitation. Nous avons choisi une largeur d'impulsion de $0.033 \times \Gamma^{-1}$

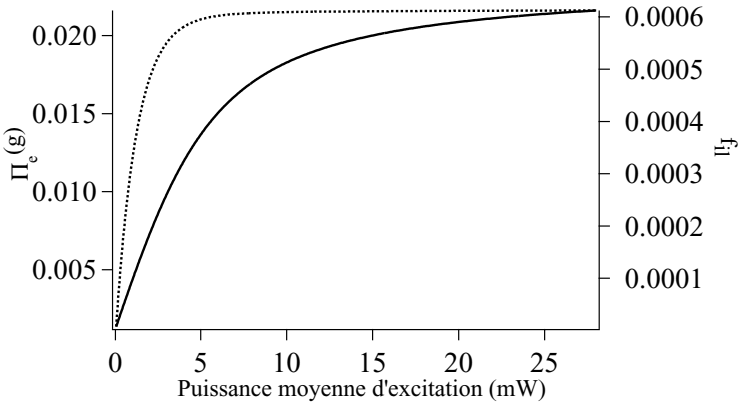


Figure 1.4: *Facteur f_{il} (axe de droite, trait plein) et probabilité d'émettre au moins un photon (axe de gauche, trait pointillé)* $\Pi_e^{(g)}$ *en fonction de la puissance moyenne d'excitation pour une efficacité de collection de* $\eta = 0.021$ *et une largeur d'impulsion* $0.033 \times \Gamma^{-1}$

et une efficacité de collection de $\eta = 0.021$ ce qui correspond approximativement aux valeurs expérimentales du chapitre 5. On remarque que même après saturation de la probabilité d'émission, le taux de fuite d'information continue à croître. Ceci implique que la probabilité d'émettre un deuxième photon croit en fonction de la puissance, même lorsque le système est saturé.

Il y a donc une puissance optimum pour laquelle la probabilité d'émettre un photon est maximale, tout en gardant un taux faible d'impulsions contenant deux photons. En pratique on n'a pas accès au facteur f_{il}. On peut cependant mesurer expérimentalement le taux d'impulsions contenant deux photons. On se basera sur ce taux pour trouver le compromis entre la puissance d'excitation et le taux d'impulsions contenant deux photons (une étude détaillée de cette mesure sera présentée au chapitre 5).

Soit $p(1)$ la probabilité d'avoir un photon dans l'impulsion. Dans le cas d'une source poissonnienne et pour $p(1) << 1$, la probabilité d'avoir deux photons s'écrit $p_2 = p_1^2/2$. Pour une source de photons uniques imparfaite, on pose $p_2^{SPU} = C_N(0)p_1^2/2$. Le facteur $C_N(0) < 1$ représente donc la réduction de la probabilité d'avoir deux photons par impulsion, par rapport à une source poissonnienne ayant la même probabilité $p(1)$. En supposant que la probabilité d'avoir trois photons dans une impulsion est très faible, la valeur $C_N(0)$ expérimentalement accessible est reliée au facteur f_{il} par l'équation :

$$f_{il} = \frac{C_N(0)\frac{p_1^2}{2}}{p_1 + C_N(0)\frac{p_1^2}{2}} \tag{1.34}$$

$$\Rightarrow C_N(0) = \frac{f_{il}}{1 - f_{il}} \times \frac{2}{p_1} \tag{1.35}$$

On définit le facteur de mérite Ξ pour une source de photons uniques comme le rapport entre la courbe de saturation (i.e. $\Pi_e^{(g)}$ la probabilité de détecter au moins un photon) et le facteur $C_N(0)$ l'écart à la loi de Poisson du nombre d'impulsions contenants deux photons ou plus.

$$\Xi = \frac{\Pi_e^{(g)}}{C_N(0)} \tag{1.36}$$

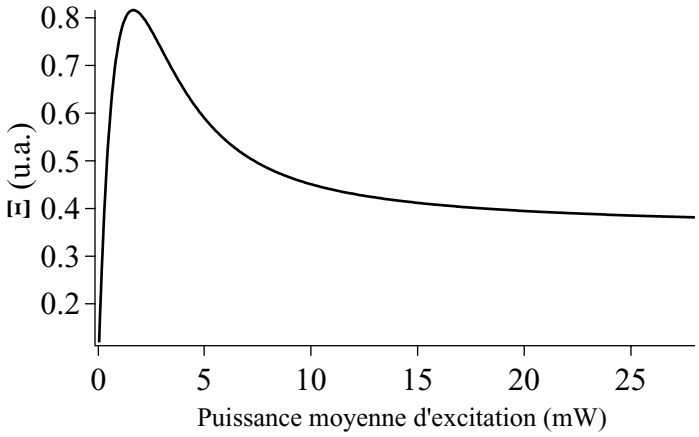


Figure 1.5: *Facteur de mérite Ξ en fonction de la puissance d'excitation. Les caractéristiques sont les mêmes que sur la figure 1.4*

Sur la figure 1.5 nous avons représenté le facteur de mérite Ξ. La puissance d'excitation optimum (P_{opt}) est telle que le taux d'émission du centre unique commence à saturer. Pour $P < P_{opt}$, le facteur de mérite décroît car la probabilité d'émettre un photon décroît aussi. La source est inefficace. Par contre pour $P > P_{opt}$, la probabilité d'émettre au moins un photon est saturée, mais la probabilité d'émettre un deuxième photon devient plus importante. Pour une puissance $P \gg P_{opt}$ la probabilité d'émettre deux photons sature aussi, et donc le facteur Ξ tend vers sa limite. Plus rigoureusement, on devrait tenir compte des impulsions contenant plus de deux photons dans l'équation 1.31 lorsque la puissance d'excitation devient importante.

1.1.5.1 Conclusion

Dans cette section, on a montré qu'il est possible de créer une source efficace de photons uniques à partir de l'excitation impulsionnelle d'un système quantique à deux niveaux. Pour cela, il faut isoler un dipôle unique, et mettre au point une source laser impulsionnelle ayant les caractéristiques requises. Le nombre d'impulsions contenant deux photons peut être réduit d'un facteur 10 à 100 par rapport à une source cohérente atténuée.

Avant de passer au prochain chapitre où le montage expérimental sera décrit, nous allons rappeler comment mettre en évidence un dipôle unique sous excitation continue. En effet, la recherche et la caractérisation d'un dipôle unique se fera dans un premier temps sous excitation continue. Un lecteur averti peut directement avancer jusqu'à la section 1.3

1.2 Fonction d'autocorrélation

Pour savoir si l'on a un émetteur unique, on analyse la statistique de sa lumière de fluorescence en mesurant la fonction d'autocorrélation d'intensité. L'unicité du centre est donnée par une signature

particulière de la fonction d'autocorrélation. L'étude complète de la photodétection et de la fonction d'autocorrélation est traitée dans plusieurs références [21, 22, 23, 24, 25], et on se limitera ici à la description des résultats obtenus.

1.2.1 Fonction de corrélation classique

La fonction de corrélation est très souvent utilisée pour caractériser l'évolution d'un système. On peut mesurer la corrélation d'une variable entre les instants t et t', ainsi que la corrélation entre deux variables, pour voir si elle sont reliées. Dans notre cas, nous allons considérer la corrélation temporelle de l'intensité lumineuse.

La fonction de corrélation d'ordre 2, appellée aussi fonction d'autocorrélation d'intensité s'écrit :

$$g^{(2)}(t_1,t_2) = \frac{< E^*(t_1)E^*(t_2)E(t_2)E(t_1) >}{\sqrt{< |E(t_1)|^2 >< |E(t_2)|^2 >}} = \frac{< I(t_1)I(t_2) >}{< I(t_1) >< I(t_2) >} \tag{1.37}$$

où $I(t_i) = E^*(t_i)E(t_i)$ est l'intensité du champ électrique à l'instant t_i, et $E^*(t_i)$ est le conjugué complexe de $E(t_i)$.

1.2.1.1 Propriétés

Dans le cas d'une lumière semi-classique, on peut établir quelques propriétés de la fonction d'autocorrélation à partir de l'équation 1.37. Tout d'abord, l'inégalité de Cauchy-Schwartz implique que :

$$\left(\sum_i a_i b_i\right)^2 \leq \sum_i a_i^2 \sum_i b_i^2 \tag{1.38}$$

et par conséquent

$$< I_i(t_1)I_i(t_2) >^2 \leq < I_i^2(t_1) >< I_i^2(t_2) > \tag{1.39}$$

De plus pour un processus stationnaire on a $< I_i^2(t_1) >=< I_i^2(t_2) >$. En effectuant le changement de variables $\tau = t_2 - t_1$, on obtient l'inégalité suivante :

$$< I(t)I(t+\tau) >^2 \leq < I^2(t) >^2 \tag{1.40}$$

$$g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0) \tag{1.41}$$

Cette inégalité montre que la fonction d'autocorrélation classique est maximale en $\tau = 0$. Cette propriété est appelé groupement de photons : les photons arrivent par paquets.

Par ailleurs, en utilisant l'inégalité

$$< (I(t) - < I(t) >)^2 > \geq 0 \tag{1.42}$$

on obtient :

$$< I(t)^2 > \geq < I(t) >^2 \tag{1.43}$$

On en déduit que pour $\tau = 0$:

$$g^{(2)}(0) \ \geq \ 1 \tag{1.44}$$

La fonction d'autocorrélation classique est forcément supérieure à 1 au temps $\tau = 0$. Remarquons que la valeur $g^{(2)}(0) = 1$ correspond à une absence de corrélations entre deux photodétections simultanées : les deux photons sont détectés "par hasard" au même instant. Classiquement la corrélation peut être plus grande que cette valeur aléatoire, mais pas plus petite : il ne peut pas y avoir "d'anticorrélation" entre les photodétections.

1.2.1.2 Fonction d'autocorrélation d'une lumière thermique

On peut montrer que pour une lumière thermique (ou chaotique), la fonction d'autocorrélation s'écrit sous la forme

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \tag{1.45}$$

où $g^{(1)}(\tau)$ est la fonction de corrélation du champ électrique. Pour une lumière thermique avec élargissement Doppler, ce terme s'écrit

$$|g^{(1)}(\tau)| = e^{-\gamma^2\tau^2} \tag{1.46}$$

où γ est la largeur de raie. Dans le cas où l'élargissement est plutôt dû aux collisions entre émetteurs, la raie de résonance est lorentzienne et

$$|g^{(1)}(\tau)| = e^{-\gamma|\tau|} \tag{1.47}$$

Dans les deux cas, on remarque que $g^{(2)}(0) = 2$.

1.2.2 Fonction de corrélation quantique

Pour avoir une description plus complète de la fonction d'autocorrélation il faut tenir compte de la nature quantique de la lumière. Dans une description quantique du champ électromagnétique, le champ électrique s'écrit :

$$E(x) = E^{(+)}(x) + E^{(-)}(x) \tag{1.48}$$

où le terme $E^{(-)}(x)$ est le conjugué hermitien du terme $E^{(+)}(x)$. La fonction de corrélation d'ordre 2 est alors donnée par l'expression suivante (eq. 1.37):

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{< E^{(-)}(t_1)E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_2)E^{(+)}(t_1) >}{< E^{(-)}(t_1)E^{(+)}(t_1) >< E^{(-)}(t_2)E^{(+)}(t_2) >} \tag{1.49}$$

que l'on peut écrire

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{<: I(t+\tau)I(t) :>}{< I(t) >^2} \tag{1.50}$$

La notation $<: \quad :>$ indique que les opérateurs sont rangés dans l'ordre normal. La différence fondamentale entre les équations 1.50 et 1.37 est le fait que $E^{(+)}(t_1)$ et $E^{(+)}(t_2)$ ne commutent pas. On ne peut donc plus appliquer le théorème de Cauchy-Schwartz et $g^{(2)}(0)$ peut s'annuler. Dans le cas d'une onde monomode, l'expression 1.50 devient

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{< a^+a^+aa >}{< a^+a >^2} = \frac{< \hat{n}\,(\hat{n}-1) >}{< \hat{n} >^2} \tag{1.51}$$

où $\hat{n} = a^+a$ est l'opérateur "nombre de photons", et $< \hat{n} >$ le nombre moyen de photons dans le mode.

1.2.2.1 Cas d'une lumière cohérente

Considérons une source cohérente de lumière, par exemple la lumière d'un laser, décrite par un état cohérent $|\alpha\rangle$. En utilisant la relation $a|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle$ et l'équation 1.51, on obtient que $g^{(2)}(t_1, t_2) = 1$ pour tous les instants t_1 et t_2. Ce résultat est identique à celui donné par la théorie semi-classique pour une onde monochromatique sans fluctuations. En effet, la distribution statistique des photons pour une source cohérente est poissonnienne, et donc il n'y a aucune corrélation entre les différentes photodétections.

1.2.2.2 Cas d'un émetteur unique

La fonction d'autocorrélation d'ordre 2 correspond à la corrélation entre deux événements de détection qui ont lieu en t_1 et t_2. La détection d'un photon correspond à l'application de l'opérateur d'annihilation $\mathrm{E}^{(+)}$[21, 22, 23, 24, 25]. Nous pouvons donc écrire la probabilité de détecter un photon au temps t_1 puis t_2 comme l'annihilation d'un photon en t_1 puis en t_2 :

$$\begin{aligned} P(t_1, t_2) &= \epsilon(t_1)\epsilon(t_2)|\mathrm{E}^+(t_2)\mathrm{E}^+(t_1)\,|i\rangle\,|^2 & (1.52)\\ &= \epsilon^2\,\langle i|\,\mathrm{E}^-(t_1)\mathrm{E}^-(t_2)\mathrm{E}^+(t_2)\mathrm{E}^+(t_1)\,|i\rangle & (1.53)\end{aligned}$$

où $\epsilon(t_1) = \epsilon(t_2) = \epsilon$ puisque l'efficacité de détection au temps t_1 est la même[3] qu'au temps t_2.

On peut identifier l'équation 1.53 à 1.49, et exprimer la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 sous la forme :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P(t, t+\tau)}{P(t)^2} = \frac{P(t+\tau|t)}{P(t)} \tag{1.54}$$

où on a posé $\tau = t_2 - t_1$, et où $P(t+\tau|t)$ est la probabilité conditionnelle de détecter un photon à l'instant $(t+\tau)$, sachant qu'un photon a été détecté à l'instant t. Le facteur de normalisation est

[3] Experimentalement, il faut tenir compte du temps mort des photodiodes à avalanches. Ce temps donnera la limite de résolution temporelle que l'on peut atteindre.

simplement la probabilité de détecter un photon à n'importe quel moment. Remarquons que la fonction d'autocorrélation est indépendante de l'efficacité de détection du montage expérimental.

Il ne nous reste plus qu'à exprimer la probabilité $P(t+\tau|t)$ pour un centre émetteur unique. Considérons un système à deux niveaux, et notons σ_g et σ_e les populations respectives de l'état fondamental et de l'état excité. La détection d'un photon à l'instant t (on pose alors $t=0$), projette le système dans l'état fondamental. Ainsi la probabilité de détecter un deuxième photon à l'instant τ, est régie par l'évolution de la population de l'état excité $P(t+\tau|t) = P(\tau|0) = \Gamma\sigma_e(\tau)$ avec $\sigma_e(0) = 0$ et $\sigma_g(0) = 1$. Le terme $P(t)$ correspond à la probabilité de détecter un photon à n'importe quel instant. Cette probabilité vaut $P(t) = \Gamma\sigma_e(\infty)$, ou $\sigma_e(\infty)$ correspond à la population stationnaire. On obtient donc :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\sigma_e(\tau)}{\sigma_e(\infty)} \tag{1.55}$$

Il est facile de calculer l'évolution de σ_e pour le système à deux niveaux sans cohérence déjà étudié au début de ce chapitre, et $g^{(2)}(\tau)$ s'écrit simplement

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - exp\left(-(r+\Gamma)\tau\right) \tag{1.56}$$

où r est le taux de pompage, et Γ^{-1} la durée de vie. D'après cette équation on a :

$$g^{(2)}(0) = 0 \tag{1.57}$$
$$g^{(2)}(0) \leq g^{(2)}(\tau) \tag{1.58}$$

Les équations 1.57 et 1.58 sont respectivement en contradiction avec les équations 1.44 et 1.41, qui s'appliquent à la description semi-classique de la lumière. La propriété 1.57 est appelée anticorrélation, car à un instant donné le nombre de photodétections simultanées est plus petit que le minimum classique, associé aux "coincidences fortuites" (absence de corrélations). La propriété 1.58 est appelée dégroupement, car le nombre de photodétections simultanées est plus petit que le nombre de photodétections non simultanées. Ces deux propriétés sont clairement associées à la nature corpusculaire de la lumière.

1.2.3 Résumé

La figure 1.6 résume les différentes valeurs de la fonction d'autocorrélation pour quelques types usuels de source lumineuse.

Pour une lumière thermique, on retrouve le phénomène de groupement de photons qui implique que la probabilité de détecter un deuxième photon est maximale juste après avoir détecté le premier (voir fig.1.7).

Dans le cas d'une source quantique comme un système à deux niveaux, la probabilité d'avoir deux photons simultanés est nulle (anticorrélation), et la fonction d'autocorrélation est minimale à l'origine (dégroupement). L'effet d'anticorrélation fournit une preuve que l'émetteur que l'on observe est unique. Dans le chapitre 3 nous verrons comment observer cette signature, ainsi que les résultats obtenus avec un émetteur unique. D'après l'équation 1.55, la fonction d'autocorrélation est étroitement liée à l'évolution temporelle de la population de l'état excité. En mesurant $g^{(2)}(\tau)$, nous pourrons donc observer l'évolution de cet état dans le temps, et étudier la dynamique du système quantique.

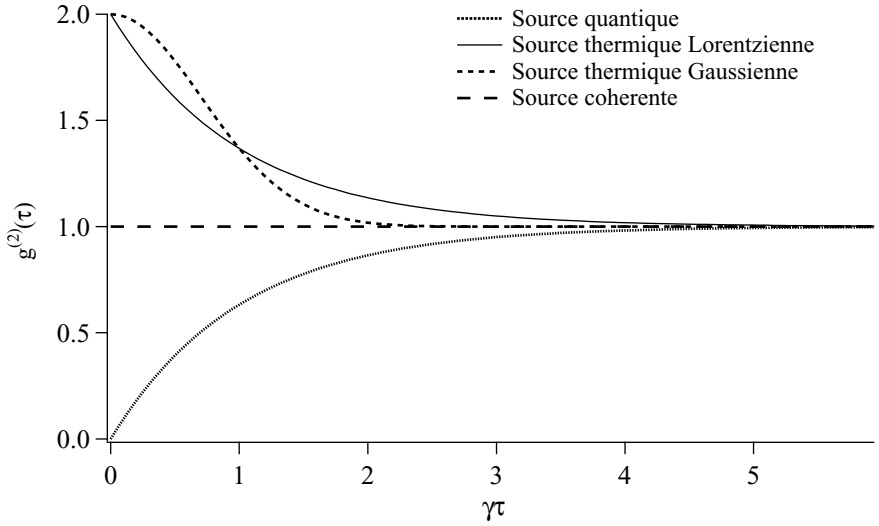


Figure 1.6: *Valeur de la fonction d'autocorrélation pour les différentes sources lumineuses décrites ci-dessus*

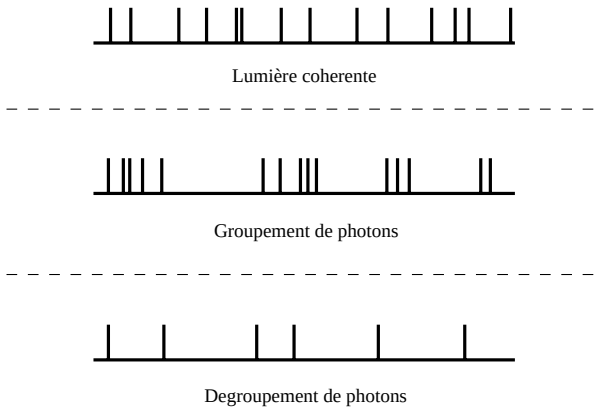


Figure 1.7: *Représentation schématique des temps d'arrivée des photons en fonction de la valeur de l'autocorrélation d'intensité.*

1.3 Les candidats pour réaliser une source de photons uniques

La première expérience de dégroupement de photons [26] fut réalisée en 1977, en utilisant un jet atomique de très faible densité. Cette expérience a permis d'observer un effet de dégroupement, mais pas d'effet d'anticorrélation, car la statistique des atomes présents dans la zone d'observation était elle-même poissonnienne: on a alors $g^{(2)}(0) \geq 1$. L'expérience a été reprise en 1987 avec un ion unique piégé [27], ce qui a permis d'observer les deux effets, car il n'y avait strictement qu'un seul ion émetteur. On peut dire néanmoins que ces deux expériences démontrent la nature non-classique de la lumière émise par un dipôle unique.

L'intérêt de la communauté scientifique pour les sources de photons uniques ayant été stimulé par les applications envisagées en cryptographie et en information quantique, plusieurs groupes sont à la recherche du candidat idéal et plusieurs voies sont activement explorées :

Molécules

Au premier abord, les molécules semblent être les candidats idéaux. Leurs caractéristiques chimiques sont généralement très bien connues, et il est assez simple de préparer des échantillons à faible concentration. Leur grand désavantage est leur manque de photo-stabilité. Les molécules sous excitation optique subissent une transformation chimique irréversible, après avoir émis un certain nombre de photons (de l'ordre de 10^6). Ce phénomène est connu sous le nom de photo-blanchiment, et intervient généralement après quelques millisecondes d'excitation à saturation. Mais bien que les molécules ne soient pas stables à température ambiante, elles le sont à très basse température [28].

Les premières expériences de dégroupement de photons à partir de molécules uniques ont eu lieu en 1992 [28]. La molécule utilisée était du pentacène dans une matrice hôte de para-terphényl, refroidi à 1.5 K. Ce même système a aussi été utilisé en 1999 pour réaliser une source de photons uniques [17]. L'excitation s'effectue par un passage adiabatique de la fréquence de résonance de la molécule autour de la fréquence du laser d'excitation en appliquant un champ électrique.

La première réalisation d'une source de photons uniques avec un laser impulsionnel fut reportée en 1996 [29], En excitant de l'Oxazine 720 par un laser impulsionnel à une témperature de 10 K.

Semi-conducteurs

D'autres systèmes ont aussi été étudiés. Les boîtes quantiques (quantum dots) de semi-conducteurs InAs présentent de bonnes caractéristiques à basse température (4 K). Ces émetteurs sont en effet photostables, et le niveau excité à une durée de vie de l'ordre de quelque nanosecondes. Ce sont des îlots de semi-conducteurs d'une hauteur quelques nm, pour un diamètre de quelques dizaines de nm. Les niveaux électroniques à l'intérieur de la boîte sont donc quantifiés. Chaque désexcitation d'une paire électron-trou injectée dans la boîte produit l'émission d'un photon. Généralement lorsqu'on excite une boîte quantique on injecte plusieurs paires électron-trou. Il a été observé que la désexcitation de la paire N vers la paire N-1 se produit à une longueur d'onde différente de N-1 vers N-2. En utilisant un filtrage spectral approprié il est donc possible d'isoler la désexcitation de 1 vers 0, qui ne contiendra qu'un seul photon. D'après le processus de fabrication, il est assez simple d'insérer une boîte quantique directement à l'intérieur d'une microcavité. Un couplage très important entre la boîte quantique et la cavité a été observé [30] (effet Purcell).

Il existe une autre famille de semi-conducteurs, que l'on peut manipuler à température ambiante. Ce sont les nanocristaux de CdSe. La lumière émise présente la signature de dégroupement de photons [31]. Cependant l'émission d'un nanocristal de CdSe présente un clignotement de grande période (de quelques minutes à plusieurs heures) attribué à des mécanismes complexes d'ionisation. Ces clignotements, tant qu'ils ne seront pas compris et éliminés, sont un obstacle pour utiliser les CdSe en tant que source de photons uniques.

Centres Colorés

Dans le cadre de cette thèse, on a choisi de travailler avec le centre coloré "NV" dans le diamant. Son avantage par rapport aux autres sources est sa photostabilité intrinsèque à température ambiante. Sa courte durée de vie (11.6 ns [32]) permet un taux de répétition élevé, et son efficacité quantique est proche de un [33, 34]. L'existence de centres NV individuels dans le diamant massif a été mise en évidence expérimentalement en 1997 [35, 36] et 1999 [37], mais sans observer de signature de dégroupement. L'unicité des centres était inférée en analysant la structure spatiale de l'image des échantillons, ainsi que la valeur du taux de fluorescence en fonction de la dose d'irradiation, qui détermine la concentration des centres NV.

1.4 Conclusion

La réalisation d'une source de photons uniques est théoriquement assez simple : sous excitation impulsionnelle, un dipôle unique n'émet qu'un seul photon à la fois. Pour des paramètres expérimentaux réalistes, la probabilité d'avoir deux photons dans une impulsion est réduite de deux ordres de grandeur par rapport à une source cohérente atténuée. Le dipôle unique que nous avons choisi est le centre NV du diamant. Dans le chapitre suivant, les caractéristiques du centre NV seront détaillées, ainsi que le dispositif expérimental mis en place pour pouvoir isoler un centre NV unique.

Chapitre 2

Dispositif expérimental

Le centre NV dans le diamant présente des caractéristiques qui semblent très prometteuses pour la réalisation d'une source de photons uniques, en particulier une grande photostabilité à température ambiante. Après une brève présentation du cristal de diamant, hôte du centre NV, nous allons passer en revue les propriétés et les méthodes de préparation des centres NV. Puis nous décrirons le montage expérimental mis au point pour isoler un centre NV unique.

2.1 Le diamant

Le cristal de diamant possède un grand nombre de propriétés intéressantes. Avant tout, c'est la pierre qui séduit le plus de personnes dans le monde ! Mais c'est aussi un matériau couramment utilisé dans de nombreuses applications.

Sa dureté fait qu'il est un matériau de choix pour découper ou forer. Sous forme de microcristaux, il est souvent utilisé comme abrasif ou produit de polissage dans l'industrie du verre. De plus il est chimiquement inerte et donc très résistant dans des milieux extrêmes. Dans des conditions normales, il ne subit aucune altération, mais il se transforme en graphite lorsqu'il est chauffé à des températures supérieures à 850^oC à l'air. Il possède également une très bonne conductivité thermique et est utilisé comme contact thermique dans l'industrie des circuits intégrés. Le diamant est classé dans les matériaux semiconducteurs, au même titre que le silicium.

Le diamant existe sous forme naturelle ou synthétique. Il existe deux techniques pour le synthétiser. La première est de transformer le graphite en diamant en le soumettant à de très hautes pressions ($50 \times 10^8 Pa$) et températures (2000^oC). Ce procédé permet la création de monocristaux de bonne qualité et de grande taille. La deuxième technique consiste à réaliser un dépôt de carbone assisté par plasma. Cette technique appelée CVD (Chemical Vapor Deposition) permet de contrôler très précisément la formation du cristal et de fabriquer des films de diamant de quelques nanomètres d'épaisseur. A la différence de la première méthode, le diamant ainsi formé est souvent polycristallin. L'avantage de cette technique est de pouvoir doser la quantité d'impureté que l'on ajoute dans le cristal. Les impuretés présentes dans le cristal de diamant peuvent être optiquement actives, c'est-à-dire fluorescentes. On parle de centres colorés du diamant, car ils sont responsables de la coloration du cristal.

2.1.1 Classification du diamant

La classification du diamant est basée sur les propriétés d'absorption optique et paramagnétique des impuretés d'azote [38]. On distingue deux types.

2.1.1.1 Type I

Le type I correspond à l'ensemble des diamants pour lesquels l'absorption optique et paramagnétique est principalement due aux impuretés d'azote. Une grande partie des diamants naturels font partie de cette catégorie. Ce type est sous divisé en deux catégories supplémentaires, le type Ia et le type Ib. Le type Ia rassemble tous les diamants pour lesquels il n'y a pas d'absorption due à un seul atome d'azote : les impuretés d'azote sont présentes sous forme d'agrégats. La plupart des diamants naturels font partie de cette catégorie. Le type Ib contient de façon prédominante des atomes d'azote en substitution. On trouve rarement des diamants naturels dans cette sous-catégorie, qui englobe presque tous les diamants synthétiques. Une caractéristique commune des diamants Ib est la présence de centres colorés[1] NV, 575 et S1

2.1.1.2 Type II

Contrairement au type I, on classe dans cette catégorie les diamants dont les défauts ne sont pas majoritairement constitués d'azote. La concentration d'azote est alors inférieure à $10^{17}\text{atomes}\cdot\text{cm}^{-3}$. On classe les diamants de Type II en deux sous-catégories en fonction de leur absorption optique due au brome et à l'hydrogène. Le type IIa n'a pas d'absorption due à ces deux éléments. C'est le cristal qui est le plus transparent optiquement. Le type IIb au contraire a une absorption due au brome et à l'hydrogène. Ces cristaux sont souvent utilisés comme semi-conducteurs, puisqu'ils comportent des accepteurs et des donneurs non compensés.

2.1.2 Caractéristiques optiques du diamant

Nous allons maintenant nous intéresser aux propriétés optiques du diamant. Nous limiterons cette étude aux propriétés qui sont en rapport direct avec nos expériences.

L'indice de réfraction du diamant est très élevé [34]. Il est de 2.4257 à 533.8 nm et de 2.405 à 700 nm. L'écart d'indice entre les diamants de type I et type II est inférieur à 1%, et il ne varie que de $1‰$ en fonction de la température. Le coefficient de réflexion du diamant pour une longueur d'onde de 700 nm à incidence normale vaut $R = \left(\frac{n_d-1}{n_d+1}\right)^2 = 0.17$. Ceci limite considérablement l'efficacité de collection de la lumière émise par un centre émetteur à l'intérieur du cristal.

Le diamant est transparent dans le domaine visible. La couleur jaune des cristaux de type Ib provient de la queue de l'absorption ultraviolette associée aux impuretés d'azote substitutionnel. Le diamant est aussi très riche en centres colorés [34]. On en dénombre plus d'un millier optiquement actifs, répartis sur un très grand spectre (de l'UV à l'IR). Les centres colorés sont toujours des défauts de la maille cristalline du diamant. Ainsi la présence d'un atome d'azote en substitution à un atome de carbone (centre P1) ou bien l'absence d'un atome de carbone (centre GR) forment des centres optiquement actifs. L'association d'un ou plusieurs atomes d'azote avec une ou plusieurs lacunes forment aussi des centres optiquement actifs.

Parmi les centres colorés du diamant, on distingue le centre NV qui est le centre fluorescent sur lequel notre source de photons uniques est basée. Il est constitué d'un atome d'azote (N) et d'une lacune (V : Vacancy). Il est probablement chargé négativement [39]. La forme non ionisée $[N-V]$ est appelé centre "575 nm". D'autres centres colorés basés sur l'association d'un azote et de plusieurs lacunes sont répertoriés. Ce sont les centres H3, N3, B de type $[N-V_n]$ avec $n = 2...4$ respectivement.

[1] Un centre coloré est un defaut optiquement actif dans la maille cristalline du diamant

2.2 Le centre NV

Les centres NV, appelés aussi centres 637 nm ou 1.945 eV, sont des défauts naturellement présents dans le cristal de diamant. Ils peuvent aussi êtres créés artificiellement. Ils sont constitués (fig. 2.1) d'un atome d'azote en substitution d'un atome de carbone à côté d'une lacune, la direction N-V étant orientée sur l'axe [1/4,1/4,1/4] de la maille cristalline. Ils appartiennent au groupe de symétrie C_{3v}, tandis que celle du diamant est O_h^7. Cette association forme un système moléculaire fixe dans une matrice hôte.

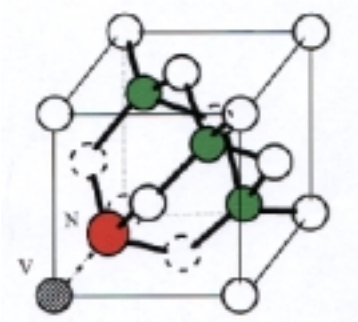


Figure 2.1: *Structure d'un centre NV à l'intérieur d'une maille de cristal de diamant*

La raie à zéro phonon est à 637 nm mais le spectre d'émission s'étend sur 100 nm (fig.2.2) à cause des répliques de phonons. Usuellement on observe 3 ou 4 répliques, mais sur des échantillons de très haute qualité, le couplage électron-phonon peut être suffisamment important pour observer jusqu'à 6 répliques à température ambiante [34]. L'élargissement inhomogène est de 750 GHz[2] pour la raie à zéro phonon [34]. Le spectre d'absorption est le symétrique de celui d'émission autour de 637 nm. Il coïncide aussi avec le spectre d'excitation. La longueur d'onde d'excitation peut être choisie indifféremment entre 514 nm et 637 nm.

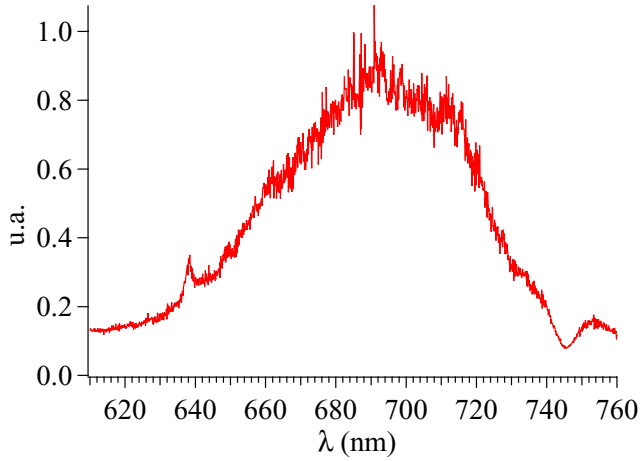


Figure 2.2: *Spectre d'émission à température ambiante de plusieurs centres NV excités à* $532nm$ *dans le diamant massif*

[2]Soit environ 3 meV ou bien 0.6 nm

La structure électronique du centre NV a été établie de façon définitive après plusieurs années de polémiques. Il s'agit d'une transition électronique entre un état fondamental triplet de spin, de symétrie ^3A, vers un état excité de symétrie ^3E [40, 41, 42, 43, 34]. D'autres niveaux, de symétrie ^1E et ^1A, ont aussi été identifiés. Leur énergie est 0.44eV et 1.67eV respectivement [34] (fig. 2.3). Les transitions vers ces niveaux étant optiquement interdites, ils peuvent jouer le rôle d'états pièges [35, 37]. A basse température le niveau ^1A est responsable de la disparition de la fluorescence car il dépeuple l'état excité [36]. Il est néanmoins possible de repomper l'état métastable vers le niveau excité à l'aide d'un laser à 488 nm. La désexcitation du centre NV se fait préférentiellement vers le sous-niveau de plus basse énergie de l'état fondamental, ce qui produit du pompage de spin et rend le centre paramagnétique [44].

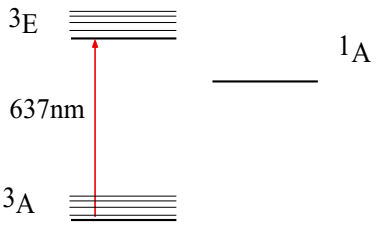


Figure 2.3: *Diagramme des niveaux du centre NV.*

L'existence de sous-niveaux dans l'état fondamental est une originalité des systèmes moléculaires fluorescents, qui sont souvent des états singulets (nombre pairs d'électrons appariés). Il existe d'ailleurs des propositions pour tranformer le centre NV en qubit en utilisant cette propriété [45].

On peut résumer les principales caractéristiques qui rendent le centre NV attrayant pour réaliser une source à photons uniques à température ambiante.

- Sa courte durée de vie ($\Gamma = 11.6$ns), permet un taux de répétion élevé[3] (environ 10 MHz).
- Son efficacité quantique proche de l'unité[4] garantit l'émission d'un photon après chaque impulsion d'excitation.
- Le spectre d'émission est bien séparé du spectre d'absorption. Il est donc facile d'isoler la lumière d'excitation monochromatique de la lumière de fluorescence.
- Le centre NV se trouve naturellement fixé dans une matrice solide, ce qui rend sa manipulation assez aisée.
- Finalement il est important de souligner que le centre NV est intrinsèquement photostable. A l'inverse des molécules ou d'autres centres colorés dans les cristaux (par exemple LiF), il ne présente pas de photoblanchiment. Nos expériences ont montré une stabilité photophysique supérieure à sept jours. On n'a observé aucune modification de la lumière de fluorescence, aussi bien sous excitation continue qu'impulsionnelle.

Nos premières expériences ont été réalisées avec des centres NV dans le diamant massif. D'après les travaux extensifs de Gruber *et al* [35] et Dräbenstedt *et al* [36], seul le diamant de type I possède

[3] Typiquement la probabilité pour que le centre NV soit encore excité après $5 \times \Gamma$ est de 7×10^{-3}

[4] La seule voie de désexcitation connue du centre NV est radiative

une concentration suffisante d'azote. De plus, c'est seulement dans le type Ib que les atomes d'azote substituent un atome de carbone, et ne forment pas d'agrégats.

Les échantillons, de dimensions $1.5 \times 1.5 \times 0.1$ mm^3, sont fournis par la compagnie Drukker International. Ils sont taillés suivant l'axe cristallographique [110]. En effet, un centre NV se forme toujours suivant l'axe [111] du cristal [34]. Dans une maille de cristal il existe 2 axes [111] équivalents, reliant les sommets d'un cube. Ainsi pour une coupe suivant l'axe [110] on aura 50% des centres dans le plan perpendiculaire à l'axe optique de l'objectif de microscope. Dans l'hypothèse où l'émission des centres NV est celle d'un dipôle, cette configuration nous permettra de collecter un maximum de lumière émise.

L'azote étant naturellement présent dans le diamant, il faut créer les lacunes (V : Vacancy) dans la maille cristalline. Elles sont obtenues par irradiation électronique, neutronique ou bien par des ions de haute énergie. Lorsqu'une particule énergétique entre en collision avec un atome de carbone, ce dernier est expulsé de la maille. Un recuit, pendant 2 h, sous vide à $850°$C rend les lacunes mobiles. Elles s'immobilisent lorsqu'elles rencontrent un atome d'azote pour former un centre NV [34].

Nous avons effectué les premières expériences [46] sur des échantillons irradiés avec des électrons de 1.5 MeV à des doses de 10^{12} à 10^{14} e^-/cm^2. Nous avons réussi à mettre en évidence les centres NV, mais leur concentration était trop importante, et il était difficile d'isoler un centre unique. Il s'est avéré par la suite que la concentration de centres NV est suffisante dans les échantillons commerciaux, et que l'irradiation est donc inutile. Les résultats de ces expériences seront exposés en détail dans le Chapitre 3.

2.3 Le microscope confocal

Pour isoler optiquement un centre NV, et analyser sa lumière de fluorescence, nous avons mis au point un microscope confocal, ainsi qu'un système d'autocorrélation d'intensité de type Hanbury-Brown et Twiss [47] en régime de comptage de photons.

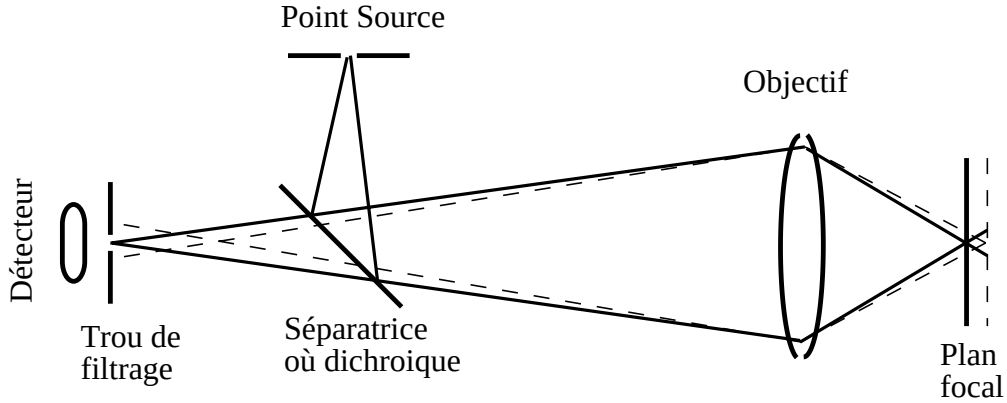


Figure 2.4: *Schéma de principe du microscope confocal*

La microscopie confocale a été introduite par Marvin Minsky [48, 49] en 1957. Une introduction générale est présentée dans la réference [50]. La figure 2.4 représente le schéma de principe. La lumière provenant d'un point source est réfléchie sur une lame séparatrice (ou dichroïque) vers un objectif de microscope, puis est focalisée sur l'échantillon. La lumière réfléchie, ou la fluorescence suivant l'expérience réalisée, est collectée par le même objectif, puis focalisée sur un trou de faible diamètre, qui joue le rôle de filtre spatial. Il est relativement simple de prouver que les seuls rayons

qui émergeront de l'autre coté du filtre spatial seront ceux qui proviennent du plan objet de l'objectif de microscope. Un détecteur placé après le filtre spatial enregistre l'intensité lumineuse. Ainsi en balayant systématiquement l'échantillon, on reconstitue point par point l'objet observé.

L'avantage principal de la microscopie confocale par rapport à la microscopie "classique" est que l'on isole la lumière provenant d'un faible volume de l'échantillon observé. Ainsi, elle permet d'obtenir un grand rapport signal à bruit, ainsi qu'une très bonne résolution spatiale. Pour cette raison, elle est devenue une technique très courante d'investigation des processus biologiques à l'échelle cellulaire [50].

2.3.1 Montage expérimental

La méthode la plus simple pour exciter un seul centre NV, et ne récolter que la lumière provenant de ce centre, consiste à éclairer un très faible volume de l'échantillon. La microscopie confocale est donc parfaitement adaptée aux besoins de la détection d'un émetteur fluorescent unique. Nous avons par conséquent réalisé un microscope confocal à partir d'éléments existants à l'Institut d'Optique. Le montage expérimental est schématisé sur la figure 2.5

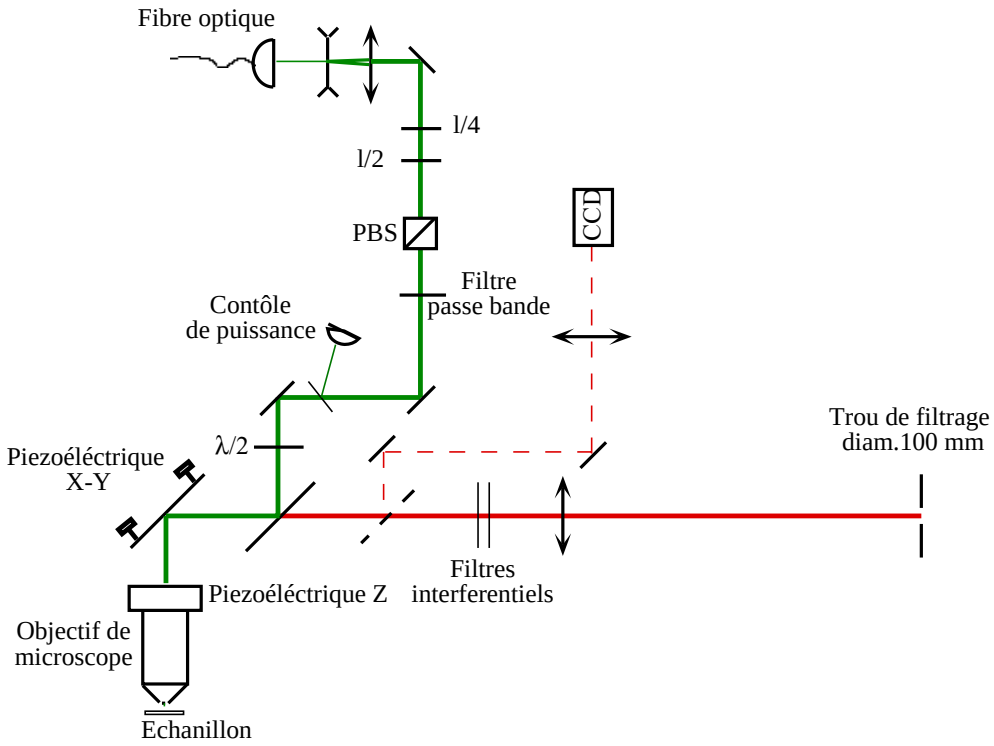


Figure 2.5: *Schéma expérimental du microscope confocal*

Pour exciter un très faible volume, tout en collectant le maximum de lumière, nous utilisons un objectif de très grande ouverture numérique (typiquement ON=1.4[5]). Pour simplifier le montage, on a choisi un objectif corrigé à l'infini, avec un grossissement de G=100. L'ouverture numérique est définie par :

[5] Nous avons utilisé un objectif Nachet d'ouverture 1.3 et un Zeiss d'ouverture 1.4

$$ON = n \sin i \tag{2.1}$$

où n est l'indice du milieu, et i le demi-angle d'incidence maximale. Avec l'objectif utilisé, nous collecterons suivant un angle de 144^o pour une ouverture de ON=1.4, ce qui représente une fraction importante de la lumière de fluorescence émise par le centre NV.

L'objectif permet en principe de focaliser la lumière d'excitation sur une taille de spot limitée par la diffraction. En supposant que le faisceau d'excitation est une gaussienne qui remplit complètement la pupille la taille du faisceau d'excitation est limité par la diffraction. Le diamètre de la tache d'Airy (en $1/e^2$) sur le plan image est donné par :

$$2w_o \approx \frac{2}{3} \cdot 2 \cdot 1.22 \frac{\lambda}{O.N.} \approx 618\text{nm} \tag{2.2}$$

pour une longueur d'onde d'excitation à 532 nm et une ouverture ON=1.4. Ainsi on n'excitera qu'une très faible zone au niveau de l'échantillon. La profondeur de champ est approximativement donnée par la longueur de Rayleigh, soit z= 1.71 μm. Le volume d'excitation est donc un cylindre de diamètre 0.618 μm et d'une hauteur de 1.71 μm.

Nous voulons maintenant collecter seulement la lumière provenant de ce volume d'excitation, afin de maximiser le rapport signal à bruit. La lumière de fluorescence collectée par l'objectif de microscope est donc refocalisée sur un trou de filtrage à l'aide d'une lentille (principe du microscope confocal). Nous pouvons estimer la focale de la lentille à utiliser, ainsi que le diamètre du trou de filtrage. La focale (f_{obj}) de l'objectif est donnée par la formule

$$f_{obj} = \frac{250\text{mm}}{G} = 2.5\text{mm} \tag{2.3}$$

et nous utilisons une lentille de focalisation de focale $f_{len} = 250$ mm. La résolution transversale du microscope confocal est donnée par la conjugaison du trou de filtrage au niveau de l'échantillon. On obtient alors une résolution de $R_{long} = d_{trou}/100$, soit un cercle d'un diamètre de 500 nm pour un trou de 50 μm. Par un calcule d'optique géometrique, on évalue la résolution longitudinale du microscope confocal à approximativement 1 μm. Avec ce choix de lentille et de trou, la résolution du microscope confocal est proche de la taille du spot laser d'excitation, et on ne collectera que la lumière provenant exactement de l'endroit que l'on excite.

La lumière d'excitation est amenée sur le montage à l'aide d'une fibre optique. On peut choisir une excitation continue par un laser Ar^+ à 514 nm, ou par un YAG doublé à 532 nm, ou bien une excitation impulsionnelle à 532 nm qui sera décrite plus loin (chapitre 5). Un système de lentilles permet de dilater le faisceau pour couvrir toute la pupille de l'objectif. Une lame $\lambda/4$ permet de corriger la polarisation après le passage dans la fibre optique, qui n'est pas à maintien de polarisation. On contrôle l'intensité du faisceau avec un "robinet" optique composée d'une lame $\lambda/2$ suivie d'un cube polariseur. Finalement pour purifier spectralement la lumière d'excitation après son passage dans la fibre, on place un filtre interférentiel passe bande, centré sur 514nm ou 532nm. En effet lors du passage dans la fibre, des effets non-linéaires de type Raman peuvent produire une lumière parasite aux longueurs d'onde d'observation, créant un bruit de fond assez grand pour masquer le signal d'un centre NV unique.

Une lame dichroïque permet d'envoyer le laser vers l'objectif. La lame dichroïque est réfléchissante pour les longueurs d'onde inférieures à 550 nm, et passante pour $\lambda > 550$ nm. Nous pouvons ainsi effectuer une première sélection spectrale de la lumière en filtrant la lumière d'excitation. Des filtres interférentiels passe-haut [6] permettent d'isoler la lumière dans la gamme de longueurs d'ondes qui nous intéresse. Chaque filtre a une extinction de 10^{-4} à 532 nm. La lame dichroïque ayant elle aussi une transmission de seulement 10^{-4} à 532 nm, on obtient une extinction totale d'au moins 10^{-8}. Or la puissance d'excitation des centres NV est de quelques mW. En supposant que 10% de la lumière d'excitation est collectée par l'objectif (par des réflexions sur diverses surfaces), on vérifie bien qu'il faut placer au moins deux filtres interférentiels pour n'avoir que ≈ 350 photons·s^{-1} de lumière parasite venant du laser d'excitation.

Pour atteindre des ouvertures numériques supérieures à l'unité, nous travaillons avec un objectif à immersion. L'huile à immersion doit avoir un faible niveau de fluorescence, car même si nous ne focalisons pas directement dans l'huile, elle est responsable d'une partie de la fluorescence parasite. Nous utilisons l'huile Cargille Type FF (Code formule 159). Son indice de réfraction est de 1.479. Pour une puissance d'excitation de 1 mW focalisée directement dans l'huile, on ne détecte que quelques milliers de photons. A l'inverse, une huile standard émet plus de 10^5 photons par seconde dans les mêmes conditions.

2.3.2 Positionnement du faisceau d'excitation

Pour pouvoir faire une image de l'échantillon étudié, on doit pouvoir balayer le faisceau d'excitation au niveau de l'échantillon suivant les trois degrés de liberté (X Y dans le plan et Z longitudinalement). L'objectif de microscope est monté sur une bague piézo-électrique (Piezo Jena modèle MIPOS-3) qui permet de positionner le spot d'excitation suivant l'axe z sur une plage de $100\mu m$, en appliquant une tension de -10 à 150V. Le positionnement sur le plan $x-y$ se fait à l'aide d'un miroir à $45°$ (fig 2.5) monté sur une cale piézo-électrique (Piezo Jena modèle PSH2 2NVB avec un plateau de type B). L'excursion totale au niveau de l'échantillon dépend de l'angle de tilt de la cale, et du grossissement de l'objectif. L'angle maximal est de 2 mrad pour une tension de $150V$. Avec un objectif $\times 100$ (focale 2.5 mm) ceci équivaut à une course de $10\mu m$ au niveau de l'échantillon. On peut ainsi balayer une zone de $10 \times 10 \mu$m^2 suivant les deux axes. La lumière de fluorescence est réfléchie par ce même miroir, et dirigée vers le trou de filtrage. Nous pouvons donc positionner le faisceau d'excitation dans un volume de $10 \times 10 \times 100$ μm^3.

Les trois axes sont contrôlés par ordinateur à l'aide d'une carte National Instruments PCI-Lab1200. La position de l'axe Z est commandée par une tension $0-10V$ codée par la carte PCI-Lab1200 sur 12 bits, et les axes XY par une interface RS232 (8 bits). La résolution des déplacements au niveau de l'échantillon est donnée par la précision des tensions de commande. Elle est de $100\mu\text{m}/2^{12} = 24$ nm pour l'axe Z, et de $10\mu\text{m}/2^8 = 39$ nm pour les axes X-Y.

Les signaux produits par l'informatique sont envoyés sur deux modules haute tension qui les transforment en tension $-10 \rightarrow 150$V pour commander les piézo-électriques. L'écart entre la tension attendue et la tension obtenue est inférieur à 0.1%.

L'axe Z a un taux de rafraichissement de 1 kHz, limité par la carte d'acquisition. Pour les axes X et Y, la bande passante est limitée par le taux de transfert de l'interface RS232, soit 2.4 kHz. Ces valeurs sont largement suffisantes pour notre application. On travaillera plutôt à $30-50$ Hz de rafraichissement pour chaque axe.

[6] On possède plusieurs filtres avec une longueur d'onde de coupure de 580nm, 620nm, et 645nm

Comme tous les éléments piézo-électriques, nos cales présentent des effets de "creep" et d'hystérésis. Le creep est une dérive de la cale piézo-éléctrique en fonction du temps, qui dépend de la tension appliquée. Cette dérive est proportionnelle à l'amplitude du dernier mouvement de la cale. L'hystérésis se manifeste du fait qu'un déplacement pour une tension croissante (de -10 à 150V) n'est pas le même que pour une tension décroissante. Ainsi par exemple, un point lumineux identifié à 40V lors d'un scan à tension croissante, sera retrouvé à 38V pour un scan décroissant.

Pour éviter l'effet d'hystérésis nous demandons au programme de contrôle d'effectuer tous les mouvements toujours dans le même sens. L'existence du creep nous impose de mettre en place un asservissement en position des cales piézo-électriques.

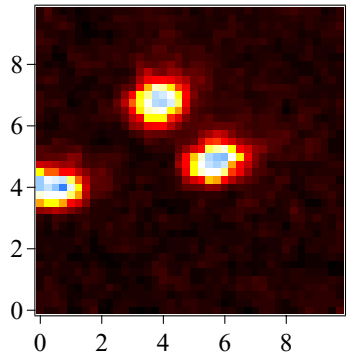


Figure 2.6: *Balayage sur* 10×10 μ*m d'un échantillon comportant des billes de crimson*

Avant d'utiliser notre microscope confocal avec les centres NV, nous l'avons testé avec des billes fluorescentes. Ce sont des billes calibrées d'un diamètre de 1 μm contenant des molécules de crimson. Leur spectre d'excitation et d'émission est compatible avec notre montage. Sur la figure 2.6 nous avons représenté une image ainsi obtenue. La résolution est de 250 nm pour chaque axe. L'image de chaque bille correspond à la convolution d'une gaussienne de diamètre ≈ 600nm (faisceau d'excitation) avec une fonction rectangle de taille 1 μm. La largeur à mi-hauteur d'une bille vaut 1.25 μm, ce qui correspond au résultat attendu. On n'observe pas d'hystérésis, et il les billes apparaissent avec un très bon contraste.

2.3.2.1 Asservissement

Le montage que nous venons de décrire présente deux sortes de dérives : celles dues au creep, intrinsèque aux cales piézo-électriques, et des dérives mécaniques de la platine de microscope. Le temps d'acquisition d'une courbe d'autocorrélation est de l'ordre d'une dizaine de minutes, et les expériences se déroulent sur plusieurs heures, alors que le système de microscopie ne reste stable que pendant environ 2 à 3 minutes. Nous devons donc compenser activement ces deux dérives, et nous avons développé un programme informatique capable de maintenir le spot d'excitation au maximum de fluorescence. Le principe est le suivant (pour un axe) :

- L'ordinateur mesure le taux (N_a) de photons émis par le centre pendant 160 ms.
- Puis il se déplace de Δx dans un sens, et mesure à nouveau le taux de fluorescence (N_b) pendant la même durée.

- Si $N_b > N_a + \sqrt{N_a}$ alors il reste dans cette position (il faut que le signal dans la nouvelle position soit supérieur au signal à la position initiale, plus le bruit de photon).
- Sinon il retourne à sa position initiale et se déplace dans l'autre sens.
- La boucle est répétée pour chacun des axes.

Cette procédure est répétée toute les 8 secondes pour chaque axe x, y, z avec un pas de 40 nm pour les axes x et y, et 250 nm pour l'axe z. Nous avons constaté qu'un seul pas dans chaque direction était largement suffisant pour garder le système stable pendant plusieurs heures. Il ne décroche qu'une fois qu'un des axes de la cale piézoélectrique arrive en butée.

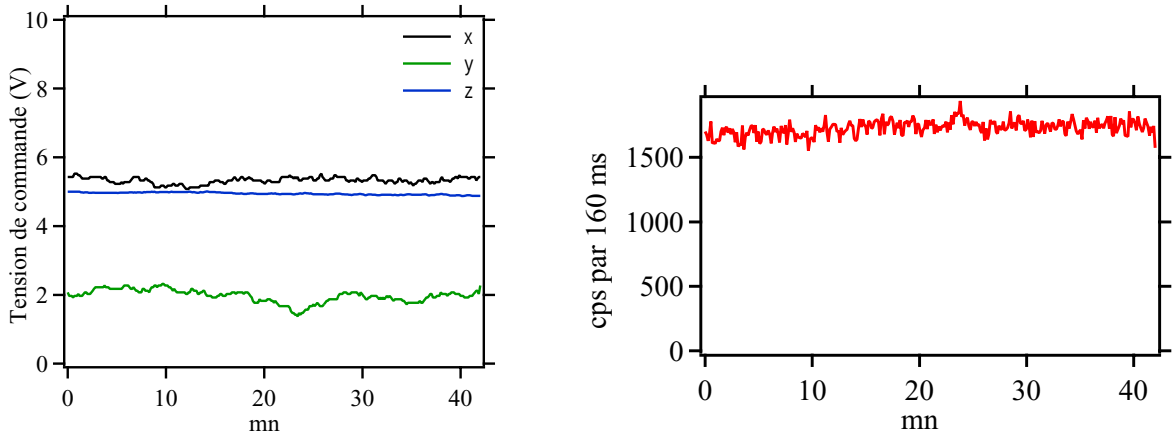


Figure 2.7: *Gauche : Tension appliquée sur chacune des cales piézo-électriques pendant l'asservissement. Droite : Taux de fluorescence en fonction du temps pendant* 42 *minutes*

La figure 2.7 montre la tension appliquée sur chacune des cales piézo-électriques pour maintenir la fluorescence à son maximum. La figure de droite montre le taux de fluorescence d'un centre NV en fonction du temps. Les légères dérives sont dues aux fluctuations de puissance du laser d'excitation.

2.3.3 Efficacité de collection

Dans le paragraphe précédent nous avons décrit le montage expérimental mis en place. Nous pouvons maintenant faire une estimation approximative de son efficacité de collection. Pour cela, nous devons tenir compte du fait que le dipôle se trouve à l'intérieur d'un cristal d'indice $n_2 = 2.4$.

Connaissant l'ouverture numérique de l'objectif, on en déduit l'angle maximal θ_{max} de collection (eq. 2.1) et on peut calculer l'efficacité de collection η_c pour un point source émettant uniformément sur 4π sr. Elle est donnée par la formule :

$$\eta_c = \frac{1}{4\pi}\int_0^{\theta_{max}} 2\pi sin\theta' d\theta' = \frac{1 - cos\theta_{max}}{2} \tag{2.4}$$

Cette formule n'est cependant valable que lorsque le dipôle est dans un milieu de même indice que le milieu entre le dipôle et l'objectif, soit un indice $n_1 = 1.5$ dans le cas d'un objectif à immersion. Ce n'est pas le cas du centre NV dans le diamant massif, ce qui complique l'estimation de l'efficacité de collection.

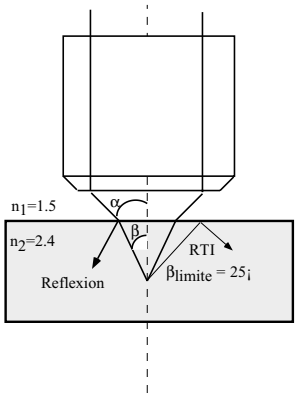


Figure 2.8: *Reflexion totale interne*

La figure 2.8 représente l'effet de la réfraction sur la lumière émise par le point source. Les rayons incidents sur l'interface avec un grand angle, n'émergent pas du diamant, et ne sont donc pas collectés. Pour tenir compte de la différence d'indice, la formule de l'efficacité de collection devient:

$$\eta_c = \frac{1}{2}\int_0^{\beta_{max}} \left(1 - \left(\frac{\sin(\beta-\alpha)}{\sin(\beta+\alpha)}\right)^2\right)\sin\beta d\beta \tag{2.5}$$

où $\alpha = \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\sin\beta\right)$ est l'angle du rayon à l'extérieur du milieu, et $\beta_{max} = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\sin\theta_{max}\right)$ l'angle de collection effectif à l'intérieur du milieu d'indice n. Dans le cas d'un objectif d'ouverture $ON = 1.4$ et d'un indice de l'huile 1.48, l'efficacité de collection η_{col} calculée est de 8%. Remarquons que si on utilise un objectif métallographique d'ouverture 0.95, qui travaille à l'air sans lamelle intermédiaire, on obtient une efficacité de seulement 2.6% (fig 2.9).

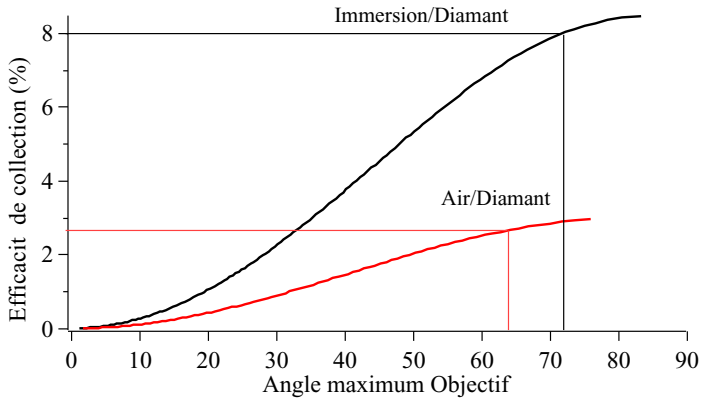


Figure 2.9: *Réflexion totale interne*

Une fois la lumière collectée, il faut aussi prendre en compte l'efficacité de propagation η_{opt} de la lumière à travers les différents éléments optiques. On peut décomposer leurs contributions de la manière suivante :

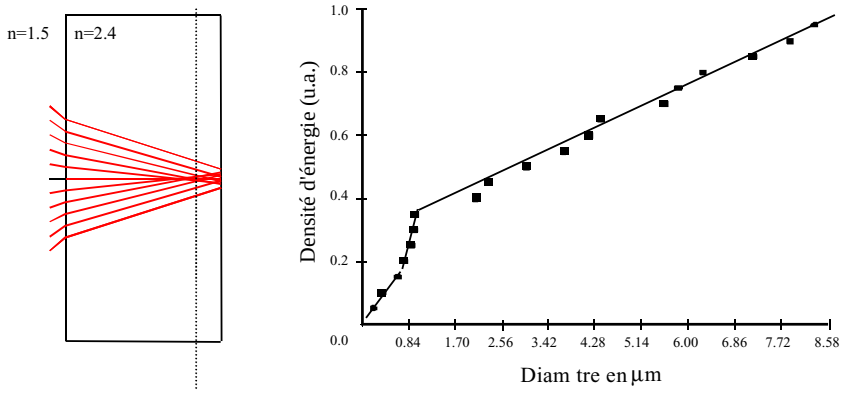
- Objectif 0.8

- Dichroique 0.8
- Filtres $0.8 * 3$
- Eléments optiques divers 0.9
- Trou de filtrage 0.9

L'efficacité globale de propagation est ainsi $\eta_p = 0.25$

Finalement, il faut aussi tenir compte des aberrations sphériques introduites lorsqu'une onde traverse un dioptre. Sur la figure 2.10 nous avons représenté la simulation par Code V des aberrations sphériques lorsqu'on traverse une surface plane entre deux milieux d'indices différents.

La figure de droite indique l'énergie lumineuse en fonction du diamètre de la zone d'excitation. On remarque une caustique d'un diamètre inférieur à 840 nm, et un piédestal qui transporte 80% de l'énergie.



Aberrations sphériques Densité d'énergie

Figure 2.10: *Simulation par Code V des rayons incidents à grande ouverture numérique avec une interface air/diamant.*

Le calcul correspond à la lumière d'excitation incidente sur le cristal de diamant. De même, la lumière émise par un centre NV, sera aberrante après avoir traversé l'interface. On estime que la perte en collection due aux aberrations de sphéricité réduit l'efficacité de détection d'un facteur important, de l'ordre de $\eta_{abb} = 0.2$.

2.3.3.1 Efficacité totale

L'efficacité totale du système pour un centre NV dans le diamant massif est estimée à $\eta^{massif} = \eta_{col} \times \eta_{opt} \times \eta_{abb} \times \eta_{50/50} \times \eta_{pda} = 0.0012$. Les facteurs $\eta_{50/50}$ et η_{pda} sont explicités dans la section 2.4. Ils correspondent à la contribution de la séparatrice du montage Hanbury-Brown et Twiss, soit $\eta_{50/50} = 0.5$, et à l'efficacité de détection des photodiodes à avalanche, soit $\eta_{pda} = 0.6$.

2.4 Montage d'autocorrélation d'intensité.

La lumière de fluorescence collectée par le microscope confocal est ensuite analysée. Pour conclure sur l'unicité du centre, nous allons mesurer l'autocorrélation de l'intensité et chercher la signature du dégroupement de photons. La figure 2.11 décrit le montage expérimental réalisé.

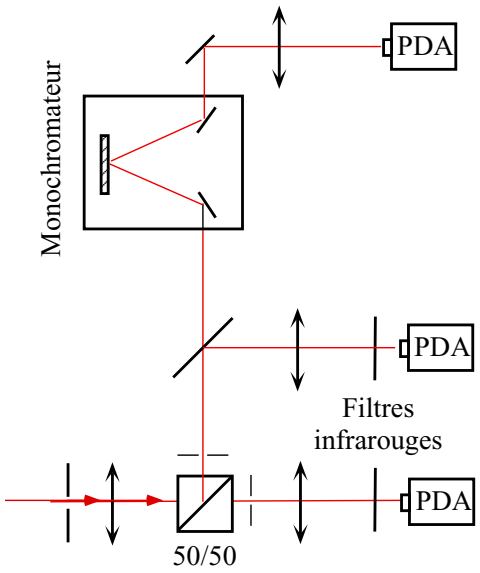


Figure 2.11: *Schéma expérimental du montage Hanbury-Brown et Twiss ainsi que du spectroscope*

La détection des photons de fluorescence est assurée par des photodiodes à avalanche (PDA) EG & G SPCM-AQR-13. Afin d'obtenir un fonctionnement en mode photon unique[7], la photodiode est polarisée au-dessus de son seuil de claquage, de telle sorte qu'un seul photo-électron suffit pour déclencher une avalanche d'électrons. Ces détecteurs sont parfaitement adaptés à la détection de très faibles flux de lumière. Leurs caractéristiques sont décrites ci-dessous.

- Efficacité de détection η_{pda} : $55 - 70\%$
- Temps mort : $40ns$
- Gigue électronique : $300ps$ (ceci correspond à la résolution temporelle ultime du détecteur)
- Coups d'obscurité : $100 - 150$ coups par seconde (cps)
- Signal de sortie : 5 V pendant 25 ns sur une charge $50\ \Omega$

Le taux d'obscurité mesure le nombre de fois où l'avalanche va se produire de façon spontanée. Un faible taux permet d'avoir de très bon rapport signal à bruit. On verra dans le chapitre 6 qu'un faible taux d'obscurité est indispensable pour la cryptographie quantique.

La gigue représente la limite de résolution temporelle que l'on peut atteindre avec les PDA, puisqu'elle donne la précision temporelle du signal de sortie par rapport au moment de la photodétection. Dans notre cas, où la durée de vie de l'émetteur est d'environ 11.6 ns, la gigue temporelle ne gêne pas la détection.

Des filtres passe-bas ainsi que les trous de filtrages de part et d'autre du cube séparateur, ont pour but d'éviter la diaphonie entre les deux photodiodes à avalanches. Une explication plus détaillée sera faite dans la section 2.4.2

La fonction d'autocorrélation d'intensité donne la probabilité d'avoir un photon détecté à l'instant τ, sachant qu'un photon a été détecté à l'instant $t = 0$ (voir chap 1.2). Le montage couramment

[7] Nommé mode Geiger ou mode d'avalanche, par analogie avec le détecteur Geiger de la physique nucléaire

utilisé dans les expériences d'autocorrélation, a été introduit par Hanbury-Brown et Twiss [47] en 1956. La lumière à analyser est divisée en deux faisceaux à l'aide d'une séparatrice (50/50) (fig.2.11), et l'on enregistre le temps qui sépare les détections de deux photons par chacune des photodiodes, placées de part et d'autre de la séparatrice. Le montage à deux photodiodes présente l'avantage d'avoir une meilleure résolution temporelle. En effet, après avoir détecté un photon, la photodiode à avalanche est inhibée pendant environ 40 ns (temps mort). Ainsi, avec une seule photodiode, on ne peut résoudre des évènements avec une résolution inférieure à 40 ns. Par contre la deuxième photodiode peut détecter un photon qui arrivera dans un temps < 40 ns par rapport à la première détection. Grâce à ce montage, on n'est pas limité par le temps mort des détecteurs, mais seulement par leur gigue temporelle. On passe ainsi d'une résolution temporelle de 40 ns à 300 ps.

Un miroir amovible permet d'envoyer la fluorescence sur un monochromateur Jobin-Yvon (H-10) avec un moteur micrométrique contrôlé par ordinateur. La lumière en sortie du monochromateur est détectée par une photodiode à avalanche. L'acquisition d'un spectre se fait en intégrant pour chaque longueur d'onde le nombre de photons détectés par la PDA. La photostabilité intrinsèque du centre NV permet l'acquisition sur des longues durées. La résolution spectrale est de 1,2 ou 5 nm en fonction des largeurs des fentes choisies. Les spectres obtenus servent à s'assurer que la lumière analysée est bien celle d'un centre NV, ainsi qu'à analyser la provenance de la fluorescence parasite éventuelle.

2.4.1 Electronique de contrôle

Nous disposons d'une carte d'acquisition PCI-Lab1200 avec 3 compteurs de 16 bits pour effectuer le comptage des photons détectés par les photodiodes à avalanches. Mais les compteurs sont très élémentaires, et nous ne pouvons pas imposer un temps de comptage, mais seulement un nombre d'évènements donnés. Chaque compteur possède une entrée Signal et Gate, et une sortie Out indiquant l'état du compteur. Elle vaut "1" si le compteur est actif, "0" sinon. Nous devons donc câbler les compteurs suivant la figure 2.12, pour utiliser la carte en compteur.

L'entrée Signal du compteur 0 est reliée à une horloge de 20 MHz interne et permet de réaliser des portes logiques programmables (sur la sortie OUT) d'une durée 50 ns à 32 ms. La sortie OUT est alors reliée sur l'entrée gate des compteurs 1 et 2. Nous contrôlons ainsi le temps de comptage des deux autres compteurs. La sortie OUT est aussi reliée sur une entrée digitale (entrée PB7) pour contrôler de façon informatique la fin du comptage.

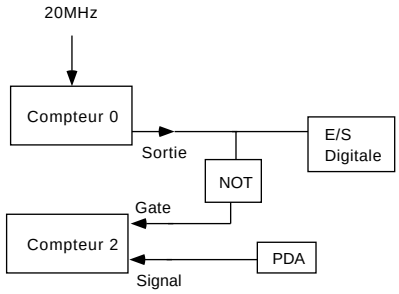


Figure 2.12: *Circuit logique pour transformer la carte PCI-1200 en compteur*

Avec cette disposition, nous sommes capables de compter pendant un temps variable de 50 ns à 32 ms. Le nombre total de photons comptés ne doit pas dépasser $2^{16} = 65536$ par fenêtre de comptage,

sinon le compteur s'initialise à 0.

La figure 2.13 reprend le schéma de principe de l'électronique de contrôle. Le signal délivré par les photodiodes à avalanches est distribué (par un "Fan-Out") vers plusieurs instruments de mesure. Durant cette étape, il faut s'assurer que les signaux distribués ne présentent pas plus de gigue que le signal original. Une sortie TTL est envoyée sur des compteurs (HAMEG HM $8021-3$), qui permettent de contrôler le nombre de photons par seconde et par photodiode. Ces compteurs permettent de cumuler le nombre de photons détectés pendant l'acquisition du signal d'autocorrélation. Cette valeur est, comme on verra par la suite, importante pour la normalisation de la fonction d'autocorrélation enregistrée. Il faut donc éviter tout rebond pour ne pas comptabiliser plusieurs fois le même photon. Les entrées des Fan-Out sont chargées par 50Ω pour adapter en impédance l'électronique et les PDA. Le signal d'une des deux photodiodes sert aussi comme signal de contrôle à l'asservissement en position des cales piézo-électriques.

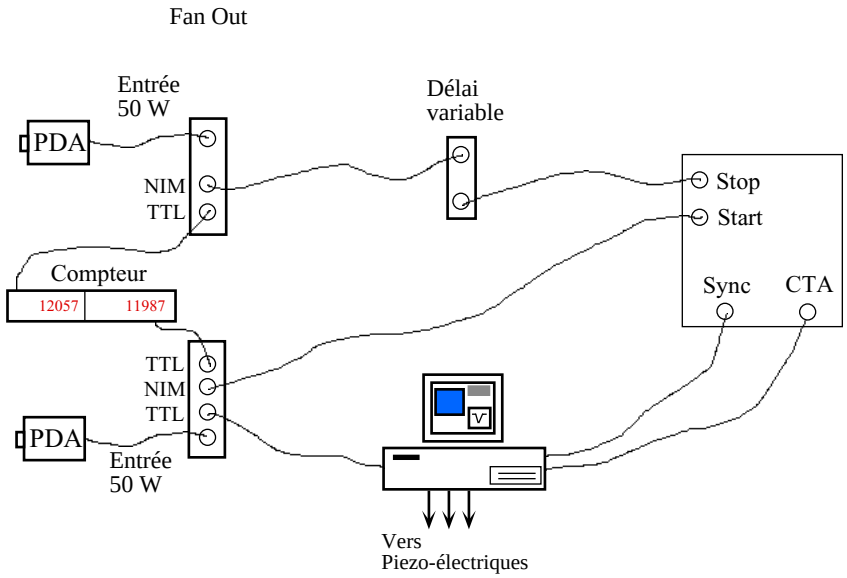


Figure 2.13: *Schéma Electronique*

Le montage Hanbury-Brown et Twiss mesure le temps d'arrivée entre deux photons. Pour enregistrer ce temps, nous utilisons un module de conversion temps-amplitude (CTA, ou TAC (Time Amplitude Converter) en anglais). Le principe de fonctionnement est simple. Un premier photon arrive sur l'entrée Start, et déclenche une rampe de tension. Elle s'arrête lorsqu'un deuxième photon arrive sur l'entrée Stop. A cet instant, le CTA délivre un signal de synchronisation et une tension continue (sur la sortie CTA) égale à la valeur de la rampe au moment du Stop. L'ordinateur de contrôle enregistre alors l'amplitude du signal qui est proportionnelle au temps entre les deux photons. La fonction d'autocorrélation correspond ainsi à l'histogramme cumulé des différents temps d'arrivée enregistrés. Pendant les expériences, nous avons utilisé deux CTA différents. Dans un premier temps, nous avons utilisé le CTA3-100 qui possède une fenêtre maximale de 70 ns, puis par la suite, nous avons travaillé avec un CTA de marque Tennelec TC 864. Sa fenêtre d'acquisition peut être réglée de 50 ns à 1 ms.

Les entrées analogiques de la carte PCI-1200 sont reliées à un convertisseur Analogique / Numérique 12 bits. Le temps de conversion est de 15 μs environ. La conversion s'effectue sur un front descendant de la commande externe branchée sur Ext-Conv. Les valeurs numérisées sont stockées dans une mémoire interne (type First In First Out) à la carte avant d'être transférées vers l'ordinateur.

Pour profiter des 12 bits de résolution, il faut régler le temps de maintien de la tension continue aux bornes du CTA, de sorte qu'elle soit supérieure à $\approx 15\mu s$. Le CTA3-100 a été spécialement modifié, tandis que le temps de maintien peut être réglé sur le Tennelec TC 864.

Cependant, le signal de synchronisation du Tennelec n'est pas conforme au signal attendu par la carte d'acquisition. Plus précisément, si un signal Start est enregistré, mais qu'aucun signal Stop n'est enregistré pendant la fenêtre temporelle d'observation, alors il délivre un signal de synchronisation d'une largeur de $1\mu s$ et une valeur CTA = $0V$. Sinon, si une coïncidence a été validée, le signal de synchronisation a une largeur de $10\mu s$. Or pour environ 10000 photons par seconde sur l'entrée Start, il n'y a qu'une dizaine de coincidences par seconde sur une fenêtre typique de 100 ns. La carte d'acquisition sature rapidement. Le schéma 2.14 présente une façon simple pour discriminer entre les deux signaux Stop, et ne retenir que les signaux de $10\mu s$.

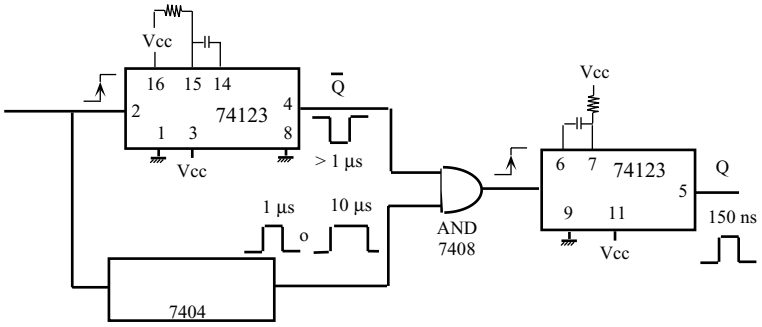


Figure 2.14: *Circuit pour discriminer entre des impulsions de* $1\mu s$ *et* $10\mu s$

Dans le montage expérimental, on ajoute une ligne à retard sur la voie Stop. Ainsi on enregistre aussi bien les événements où le premier photon est passé dans la voie Start, puis le deuxième sur la voie Stop (temps positif), que l'inverse qui correspond aux temps négatifs. La fonction d'autocorrélation ainsi observée est symétrique par rapport au temps $\tau = 0$.

Les mesures obtenues avec le système de comptage (Start-Stop) donnent directement la fonction d'autocorrélation si le nombre de coïncidences par fenêtre de détection est faible devant le nombre de photons détectés. Dans nos expériences, le nombre de photons par photodiode est typiquement égal à $N_1 \approx N_2 \approx 30000$ au maximum. Ainsi, avec une fenêtre de détection de $T_{fen} = 100$ ns, le nombre de coïncidences par seconde vaut $N_1 N_2 T_{fen} = 90$. Dans ces conditions, les effets "d'empilement" des détections sont négligeables.

Le CTA possède un temps mort pendant lequel aucun nouvel événement n'est enregistré. Ce temps est typiquement égal au temps de maintien de la tension analogique à ses bornes (environ 20 μs). Ainsi pour ne pas perdre d'évènements, il faut que le temps entre deux coïncidences soit supérieur au temps mort. Nous accepterons que ce temps soit légèrement inférieur si le nombre de coïncidences perdues est largement inférieur au nombre total de coïncidences (inférieur à 1%).

2.4.2 Diaphonie

Les expériences Start-Stop demandent une grande précision. Ainsi il faut éviter que de la diaphonie se crée entre les canaux Start et Stop. Même si le nombre d'évènements de diaphonie est

faible, le fait qu'ils soient temporellement toujours en coïncidence crée des artefacts dans la courbe d'autocorrélation. On peut énumérer deux causes de diaphonie.

2.4.2.1 Diaphonie électrique

La diaphonie électrique apparaît typiquement lorsque les deux signaux des photodiodes rentrent dans la même puce électronique pour être traités. Une impulsion dans l'entrée Start peut provoquer un signal de sortie sur la sortie Stop. Bien que ces évènements soit très rares, ils créent toujours une coïncidence lorsque ceci arrive. Les "Fan-Out" (distributeurs de signaux) que l'on utilise présentent cette imperfection. Une courbe d'autocorrélation avec une lumière blanche ($g^{(2)}(\tau) = 1 \; \forall \tau$) montre des légères oscillations. Pour éliminer ce problème, nous avons utilisé des "Fan-Out" indépendants pour chacune des photodiodes à avalanche. Ceci a suffit dans notre cas pour éliminer la diaphonie électrique.

2.4.2.2 Diaphonie optique

La diaphonie électrique n'est pas la seule cause d'artefact dans le signal d'autocorrélation. On peut aussi avoir de la diaphonie optique entre les deux voies. En effet, la détection d'un photon conduit à une avalanche d'électrons à l'intérieur de la photodiode, qui est accompagnée d'une émission de photons vers l'arrière [51]. Le spectre d'émission est représenté sur la figure 2.15. Le nombre de photons émis n'est pas très important (approximativement 43 photons/str [52]), mais ces photons sont toujours émis dans un temps court après la détection du premier photon.

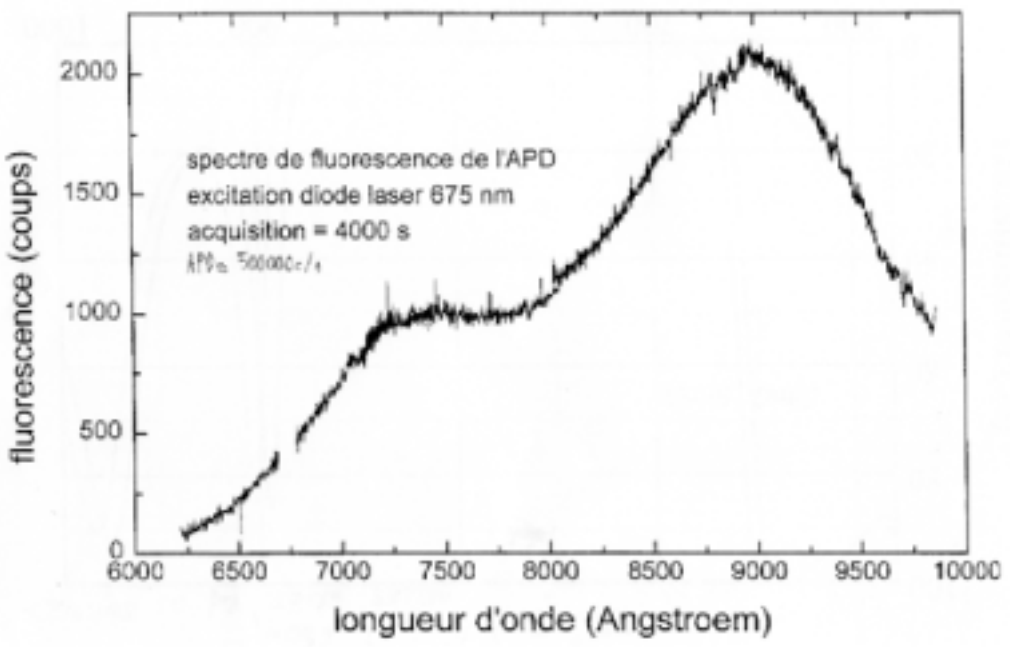


Figure 2.15: *Spectre d'émission d'une photodiode à avalanche après avoir détecté un photon [51]*

Ainsi, dans un montage de type Hanbury-Brown et Twiss, la deuxième photodiode peut détecter cette émission et enregistrer une coïncidence. Sur la figure 2.16, nous avons représenté le signal d'autocorrélation d'une source impulsionnelle[8] (taux de répétition de 10 MHz) sans précautions par-

[8]La source sera décrite dans la section 5.1

ticulières. On observe l'émission d'un photon une dizaine de nanoseconde après avoir détecté un

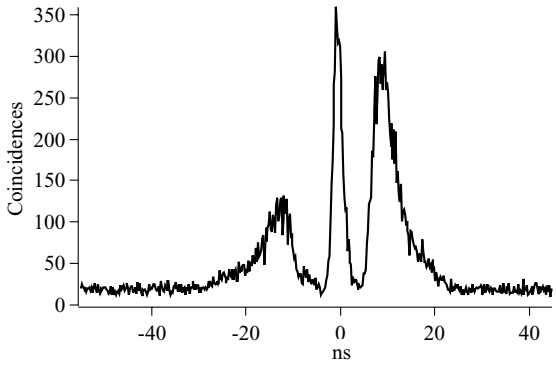


Figure 2.16: *Mise en évidence de la diaphonie entre les deux photodiodes sous excitation impulsionnelle.*

photon de la source impulsionnelle. Pour limiter ce phénomène gênant, nous avons introduit sur chacune des voies, un trou de filtrage d'un diamètre de 2 mm, ainsi qu'un filtre interférentiel qui ne laisse passer que les longueurs d'ondes inférieures à 750 nm. Ainsi nous limitons le flux de photons détectés par la deuxième photodiode. Les filtres sont choisis de façon à ne pas filtrer la lumière provenant du centre NV, mais de filtrer au maximum l'émission des PDA. Expérimentalement, nous avons réduit la diaphonie entre les deux photodiodes au-dessous du niveau mesurable.

2.4.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit le centre NV, ainsi que ses caractéristiques utiles pour réaliser une source de photons uniques. Les échantillons commerciaux de diamant massif possèdent une concentration adéquate de centres NV sans avoir besoin de les irradier.

Puis on a décrit la mise au point d'un montage de microscopie confocale, qu'on utilisera pour isoler optiquement un centre NV unique. Pour étudier la fluorescence d'un centre unique, on a monté un autocorrélateur d'intensité fonctionnant en mode de comptage de photons.

Dans le chapitre suivant, nous allons étudier un centre NV unique sous excitation continue, pour confirmer les propriétés quantiques attendues. Nous en tirerons aussi des informations sur la dynamique du centre, qui seront utiles pour le passage en excitation impulsionnelle.

Chapitre 3

Détection et caractérisation d'un centre NV unique

Dans le chapitre 2, nous avons décrit les caractéristiques d'un centre NV, ainsi que la préparation des échantillons dans le diamant massif. Nous allons à présent étudier la fluorescence d'un centre NV unique sous excitation continue.

Dans un premier temps, on verra comment isoler un centre NV unique à l'aide du microscope confocal décrit dans le chapitre précédent. On analysera la lumière de fluorescence grâce au montage d'autocorrélation d'intensité, afin d'observer les effets de dégroupement et d'anticorrélation de photons qui constituent la signature d'un objet unique. Nous détaillerons aussi plusieurs études photophysiques effectuées sous excitation continue, qui nous permettront d'observer et de caractériser quantitativement des effets de pompage vers un état métastable.

Nous aborderons ensuite les expériences réalisées avec des nanocristaux de diamant. Nous détaillerons la préparation de ces cristaux, ainsi que les observations effectuées, qui ont montré un changement de la durée de vie des centres NV par rapport à la valeur observée dans le diamant massif. Ce changement sera attribué au fait que le taux d'émission spontanée dépend de l'indice du matériau environnant le centre émetteur.

Partie A : Centres NV dans le diamant massif

3.1 Détection d'un centre NV dans le diamant massif

Le montage expérimental décrit dans la section 2.3 est utilisé pour isoler les centres NV uniques dans le cristal de diamant. L'expérience consiste à trouver un centre émetteur, puis à analyser sa lumière de fluorescence. Nous avons examiné des échantillons de diamant massif irradiés et non-irradiés. Il s'est avéré que les diamants non-irradiés présentent la bonne concentration de centres NV, soit environ $3-4$ par zone de $10 \times 10 \times 1 \mu m^3$.

Les expériences avec le diamant massif irradié, qui font l'objet de la ref. [46], nous ont permis de montrer que l'on est effectivement capable d'isoler un centre NV unique. Cependant nous n'avons pas poursuivi leur étude, car la concentration de centres NV dans ce type d'échantillon est trop élevée. Tous les résultats présentés dans la suite proviennent donc d'échantillons de diamant massif non irradiés.

3.1.1 Recherche d'un centre dans le diamant

Le cristal de diamant (1.5×1.5 mm $\times$ 100 μm) est posé sur une lame de verre, et est maintenu par une lamelle de microscope. Une goutte d'huile (Cargille) permet le contact optique entre la lamelle et le cristal de diamant. Les diamants sont préalablement nettoyés aux ultrasons dans un bain d'acétone.

Dans les expériences suivantes, le trou de filtrage spatial du microscope confocal a un diamètre de $50\mu m$. On utilise l'objectif de microscope Zeiss à immersion d'ouverture 1.3.

La recherche d'un centre NV est contrôlée par ordinateur. Un programme informatique permet de balayer l'échantillon sur la zone accessible par les cales piézoélectriques. L'utilisateur choisit ensuite le centre qu'il veut étudier, et le programme place le faisceau sur ce centre. Puis un asservissement informatique maintient le faisceau lumineux en place pour compenser les dérives du système de microscopie.

3.1.1.1 Balayage suivant l'axe Z

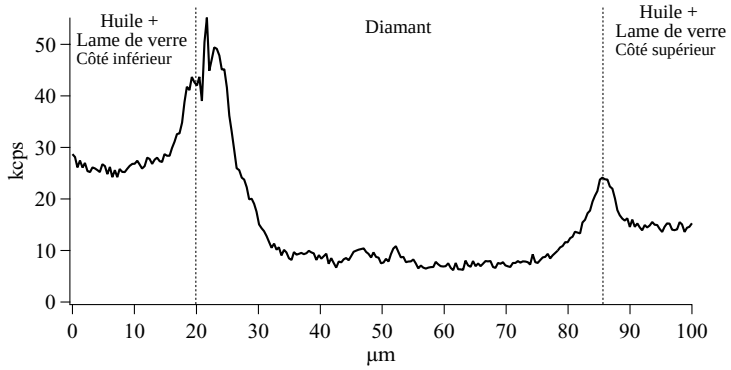


Figure 3.1: *Balayage de la cale piezoélectrique Z à travers l'échantillon de diamant.*

La figure 3.1 représente une coupe du diamant massif en déplaçant le point focal à travers l'échantillon. On remarque que sur les deux surfaces du cristal le taux de fluorescence est bien plus élevé qu'à l'intérieur du cristal. Afin de supprimer la fluorescence des surfaces du diamant, on a essayé d'effectuer un nettoyage sous plasma d'hydrogène à 750^o pendant une dizaine de minutes, suivi d'un rinçage dans une solution de HCl + HNO_2. La première étape a pour but de saturer les liaisons libres de carbone sur la surface de diamant. La deuxième permet de nettoyer le cristal des résidus de la colle utilisée pour maintenir le cristal dans le plasma. Cependant ce procédé crée une quantité importante de centres NV en surface. Par la suite les surfaces ne seront pas traitées, et on placera le plan focal d'observation approximativement à une distance de $20 - 30\mu$m sous la surface.

3.1.1.2 Balayage suivant les axes X-Y

Une fois la profondeur d'observation fixée, on procède à un balayage horizontal. La figure 3.2 représente un balayage $5 \times 5\mu$m avec une résolution de 83 nm / pixel, suivant les axes X-Y de l'échantillon. Le balayage est effectué ligne par ligne en déplaçant le faisceau à l'aide des cales piézoélectriques. Pour éviter la déformation des images (à cause de l'hystérésis), le balayage est toujours effectué de la gauche vers la droite. En effet, l'hystérésis de la piézoélectrique induit un déplacement de trois pixels pour le balayage de la droite vers la gauche par rapport au sens inverse. Le temps de comptage par pixel est de 32 ms, ainsi l'acquisition d'une image de 50×50 pixels nécessite 2.5 minutes. Sur la figure 3.2 on observe des centres lumineux d'intensités différentes, provenant de

centres NV situés dans différents plans focaux. On observe que la concentration de centres NV n'est pas uniforme sur tout le cristal. Elle peut varier entre $3-4$ centres par $25\mu m^2$, et environ 15 centres par $25\mu m^2$.

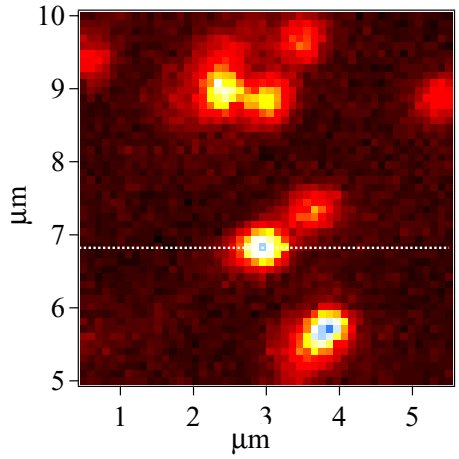


Figure 3.2: *Balayage de la cale piézoélectrique XY de l'échantillon de diamant massif.*

La figure 3.3 représente une coupe suivant le trait pointillé de la figure 3.2. Un ajustement par une gaussienne permet d'identifier les contributions respectives du fond et du centre NV. On estime une largeur à mi-hauteur de 570 nm, en accord avec la valeur théorique du spot d'excitation.

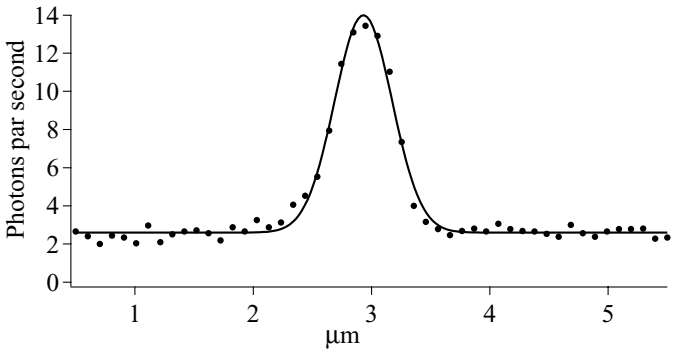


Figure 3.3: *Coupe de la figure 3.2 suivant le trait pointillé*

Remarque : Pour mesurer la taille du spot, il faut faire un balayage à faible puissance d'excitation. En effet puisque le taux d'émission du centre présente une saturation, un balayage à trop forte puissance élargira artificiellement la taille du spot mesuré.

3.1.2 Fonction d'autocorrélation d'un centre NV unique

Pour étudier un centre, notre dispositif expérimental permet de pointer l'un ou l'autre des centres émetteurs, qui apparaissent sur le balayage représenté sur la figure 3.2, puis de placer automatiquement le faisceau d'excitation sur le centre. La procédure d'optimisation de la position du faisceau sur

le centre NV est basée sur le même principe que l'asservissement décrit en section 2.3.2.1. Nous pouvons alors analyser la lumière de fluorescence émise par le centre choisi avec le dispositif Hanbury-Brown et Twiss décrit à la section 2.4. Un exemple de résultat est représenté sur la figure 3.4.

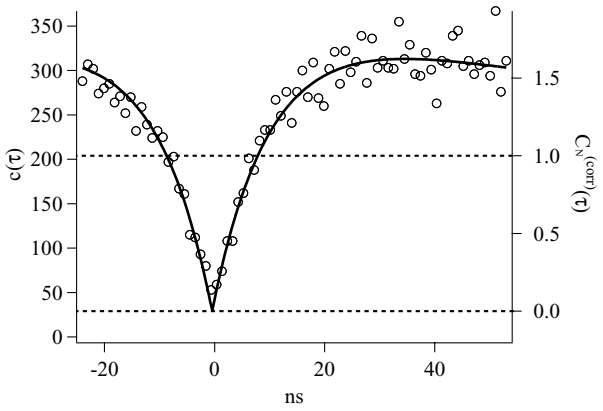


Figure 3.4: *Courbe de dégroupement de photon d'un centre NV unique dans le cristal de diamant. La puissance d'excitation est de* 1.3 *mW. Le temps d'acquisition de* 667 *s et les nombres de photons par seconde enregistrés par les deux photodiodes sont* $N_1 = 16620cps$ *et* $N_2 = 18440cps$*. L'axe de gauche représente les coincidences enregistrées, l'axe de droite la fonction d'autocorrélation après normalisation et correction du fond.*

L'axe de gauche représente les coïncidences telles qu'elles sont enregistrées pour un centre NV. Le caractère quantique de la lumière émise est bien mis en évidence puisque $c(0) < c(t)\ \forall t \neq 0$ (voir chap 1). Cependant, cela ne constitue pas une preuve que l'émetteur est unique, qui correspond à la condition $g^{(2)}(0) = 0$. Il faut donc normaliser la courbe expérimentale, puis soustraire la contribution du fond de fluorescence pour obtenir la fonction d'autocorrélation du centre émetteur, et conclure ainsi de façon non ambiguë sur son unicité.

3.1.2.1 Normalisation

Par définition, la fonction d'autocorrélation est toujours normalisée, afin que pour une source poissonnienne $g^{(2)}(\tau) = 1\ \forall\tau$. Les temps d'arrivée des photons d'une lumière poissonnienne sont par définition aléatoires et uniformément répartis dans le temps. Ainsi le nombre de coïncidences enregistrées pendant un temps T dans une fenêtre d'observation de taille w s'écrit $N_1 N_2 wT$, où N_1 et N_2 sont les nombres de photons par seconde enregistrés sur chacune des photodiodes à avalanche. Dans l'histogramme des temps d'arrivée, la fenêtre temporelle de mesure correspond à un canal de l'histogramme. Ainsi la courbe expérimentale normalisée $C_N(t)$ s'écrit :

$$C_N(t) = \frac{c(t)}{N_1 N_2 wT}. \tag{3.1}$$

Pour une puissance d'excitation de 1.3 mW (courbe expérimentale 3.4) $N_1 = 16620$ et $N_2 = 18440$ photons s^{-1}. Le temps d'intégration est de 667 s, et la taille d'un canal de l'histogramme de 1 ns. Le facteur de normalisation vaut ainsi $N_1 N_2 wT = 204$ évènements par canal. On remarque qu'après normalisation[1] $C_N(0) = c(0)/204 = 0.19 \neq 0$. Nous ne pouvons donc pas conclure de façon non ambiguë sur l'unicité d'un centre NV, puisqu'en principe on devrait avoir $C_N(0) = 0$. Nous pouvons

[1] La courbe normalisée n'est pas représentée

avancer deux hypothèses pour cet écart à la théorie : soit il y a plusieurs centres dans le volume d'excitation, soit il y a trop de lumière parasite. Dans la suite, nous allons calculer l'effet de ces deux hypothèses sur la valeur de $C_N(0)$, puis apporter la correction adéquate pour conclure sur l'unicité du centre observé.

3.1.2.2 Fonction d'autocorrélation de plusieurs centres

Considérons N centres émetteurs indiscernables à l'intérieur du volume d'excitation. L'intensité de fluorescence s'écrit alors $I(t) = \sum_{k=1}^{N} i_k(t)$. En supposant que chaque centre contribue de la même façon, et que les centres sont décorrélés deux à deux ($< i_k i_l >=< i_k >< i_l > \forall k \neq l$), la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g_N^2(\tau) = \frac{< I(t)I(t+\tau) >}{< I(t) >^2} \tag{3.2}$$

$$= \frac{1}{< I >^2} \sum_{k \neq l} < i_k(t) >< i_l(t) > + \frac{1}{< I >^2} \sum_{k} < i_k(t) i_k(t+\tau) > \tag{3.3}$$

On note que $< i_k(t) >=< i_k(t+\tau) >$. Or, à $\tau = 0$, le second terme de 3.3 est nul, car chaque émetteur unique à une probabilité nulle d'émettre deux photons à la fois (voir section 1.2.2.2). Puisque la contribution de chaque centre est identique, elle vaut $i_k(t) = I(t)/N = i(t)$, et la fonction $g_N^2(0)$ est égale à :

$$g_N^2(0) = \frac{1}{< I >^2} \sum_{k \neq l} < i_k(t) >< i_l(t) > \tag{3.4}$$

$$= \frac{N(N-1)i^2(t)}{N^2 i^2(t)}$$

$$= 1 - \frac{1}{N} \tag{3.5}$$

Ainsi la fonction d'autocorrélation présente une valeur non nulle à $\tau = 0$ si l'on excite plusieurs centres simultanément. Par exemple, si l'on excite deux centres NV simultanément elle vaut 0.5. On remarque que :

$$\lim_{N \to \infty} g_N^2(0) = 1 \tag{3.6}$$

qui est simplement la distribution statistique d'une source incohérente.

3.1.2.3 Fonction d'autocorrélation d'un centre avec une source poissonienne

Supposons maintenant que le signal ($I(t) = i_1(t) + i_2(t)$) provient d'un centre unique (i_1), et d'un fond dont la statistique est poissonnienne (i_2). La fonction d'autocorrélation au temps zéro s'écrit :

$$g^{(2)}(0) = \frac{< i_1(t)i_1(t+\tau) + i_1(t)i_2(t+\tau) + i_2(t)i_1(t+\tau) + i_2(t)i_2(t+\tau) >}{< I >^2}$$

Or i_1 et i_2 ne sont pas corrélés, ni $i_2(t)$ et $i_2(t+\tau)$ (statistique poissonnienne). Puisque $< i_1(t)i_1(t+\tau) >= 0$ pour $\tau = 0$, et que l'on suppose que le nombre de photons du fond est proportionnel au nombre de photons du centre unique $< i_2 >= \alpha < i_1 >$, on obtient :

$$\begin{aligned} < i_1(t)i_2(t+\tau) >=< i_2(t)i_1(t+\tau) > &= < i_1(t) >< i_2(t) > \\ < i_2(t)i_2(t+\tau) > &= < i_2(t) >^2 \\ \Rightarrow g^{(2)}(0) &= \frac{(2\alpha+\alpha^2) < i_1(t) >^2}{(1+\alpha)^2 < i_1(t) >^2} \quad (3.7) \\ &= 1 - \frac{1}{(1+\alpha)^2} \quad (3.8) \end{aligned}$$

Ainsi, si par exemple le fond est égal à 0.4 fois le signal, on obtient $g^{(2)}(0) = 0.5$

3.1.2.4 Correction du fond

Pour conclure sur l'unicité du centre étudié, il faut soustraire la contribution du fond de la courbe expérimentale. Le fond est mesuré indépendamment pour chaque courbe de dégroupement en balayant l'échantillon autour du centre NV. L'image obtenue est ajustée avec une gaussienne et un fond continu pour obtenir le signal S provenant uniquement du centre NV, et le fond B supposé poissonnien. On suppose que le fond en dessous du centre NV est le même que celui enregistré sur le côté, et donc que le signal total observé est *S+B*.

La correction du fond dans le signal d'autocorrélation est déduite du raisonnement suivant. On mesure expérimentalement la fonction d'autocorrélation normalisée $C_N(\tau)$, que l'on peut décomposer en une contribution du signal et une du fond ainsi que les contributions croisées.

$$C_N(\tau) = \frac{< S(t)S(t+\tau) > + < S(t)B(t+\tau) > + < S(t+\tau)B(t) > + < B(t)B(t+\tau) >}{< S(t)+B(t) >^2} \quad (3.9)$$

On introduit $\rho = S/(S+B)$. Puisque le signal et le fond sont décorrélés l'équation s'écrit :

$$C_N(\tau) = \frac{< S(t)S(t+\tau) >}{< S(t)+B(t) >^2} + 1 - \rho^2 \quad (3.10)$$

Or la contribution dans le signal d'autocorrélation provenant uniquement du centre NV, que l'on notera C_N^{corr}, vaut :

$$\begin{aligned} C_N^{corr} &= \frac{< S(t)S(t+\tau) >}{< S(t) >^2} \quad (3.11) \\ &= \frac{< S(t)S(t+\tau) >< S(t)+B(t) >^2}{< S(t) >^2 < S(t)+B(t) >^2} \quad (3.12) \\ &= \frac{< S(t)S(t+\tau) >}{< S(t)+B(t) >^2} \times \frac{1}{\rho^2} \quad (3.13) \end{aligned}$$

Ainsi la fonction d'autocorrélation d'un centre NV unique s'écrit, en fonction de la fonction d'autocorrélation normalisée expérimentale $C_N(\tau)$:

$$C_N^{corr}(\tau) = \frac{C_N(\tau) - (1-\rho^2)}{\rho^2} \tag{3.14}$$

Sur l'axe de droite de la figure 3.4, on indique la valeur de $C_N^{corr}(\tau)$ corrigée de la contribution du fond. Après correction, la courbe descend jusqu'à zéro, ce qui est la signature indiscutable d'un centre NV unique.

3.2 Photodynamique d'un centre NV unique

Cette section est consacrée à l'étude de l'évolution de la fonction d'autocorrélation d'intensité en fonction de la puissance d'excitation. Cette étude nous a permis de remonter à certains paramètres photophysiques[2] d'un centre NV.

La courbe expérimentale 3.4 montre que la fonction d'autocorrélation prend des valeurs supérieures à 1. Cette caractéristique correspond au groupement de photons induit par l'existence d'un état métastable dans lequel le centre NV peut se piéger (voir fig. 2.3). Un tel état a déjà été observé pour le centre NV dans des travaux antérieurs [35, 36] ainsi que dans la réference [54]. Des études similaires dans les molécules uniques ont permis aussi de mettre en évidence un état métastable [55] et d'en déduire les taux de transfert vers cet état métastable.

Pour mieux comprendre le rôle de l'état métastable dans la dynamique du centre NV, nous avons effectué une étude approfondie des courbes d'autocorrélations en fonction de la puissance d'excitation[53]. D'après la section 1.2.2.2 la fonction d'autocorrélation d'intensité correspond à la probabilité de détecter un photon à l'instant $t+\tau$ sachant qu'un photon a été émis à l'instant t. La détection du premier photon est équivalente à préparer le système quantique dans son état fondamental (état $|1\rangle$). On remonte ainsi à l'évolution de l'état excité (état $|2\rangle$), puisque l'on mesure sa population à l'instant τ (voir section 1.2.2.2) :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\sigma_2(\tau)}{\sigma_2(\infty)} \tag{3.15}$$

Cette population dépend directement des coefficients k_{ij} qui régissent le taux de passage d'un niveau vers un autre. On peut en déduire la population de l'état métastable.

Sur la figure 3.5, nous avons reporté les courbes d'autocorrélation normalisées et corrigées du fond, en fonction de la puissance d'excitation. La puissance d'excitation varie sur deux ordres de grandeurs. On remarque qu'à $t = 0$ la fonction est toujours nulle. A forte puissance, on est limité par la résolution temporelle du système d'acquisition, et l'on ne résout pas complètement le creux du dégroupement. Les cercles noirs sont les valeurs expérimentales, les courbes en trait plein et en trait fin seront explicitées dans la suite du manuscrit.

3.2.1 Modélisation du centre NV

Pour interpréter le comportement de la fonction d'autocorrélation on modélise le centre NV par un système à deux niveaux sans cohérences (fig. 3.6(a)), en ajoutant un niveau métastable (fig. 3.6(b)). L'existence d'un tel niveau à 37 meV de l'état excité a été établie par d'autres études [37]. Le passage vers l'état piège montre une dépendance en fonction de la température [35, 36].

[2] Cette étude est publiée dans [53].

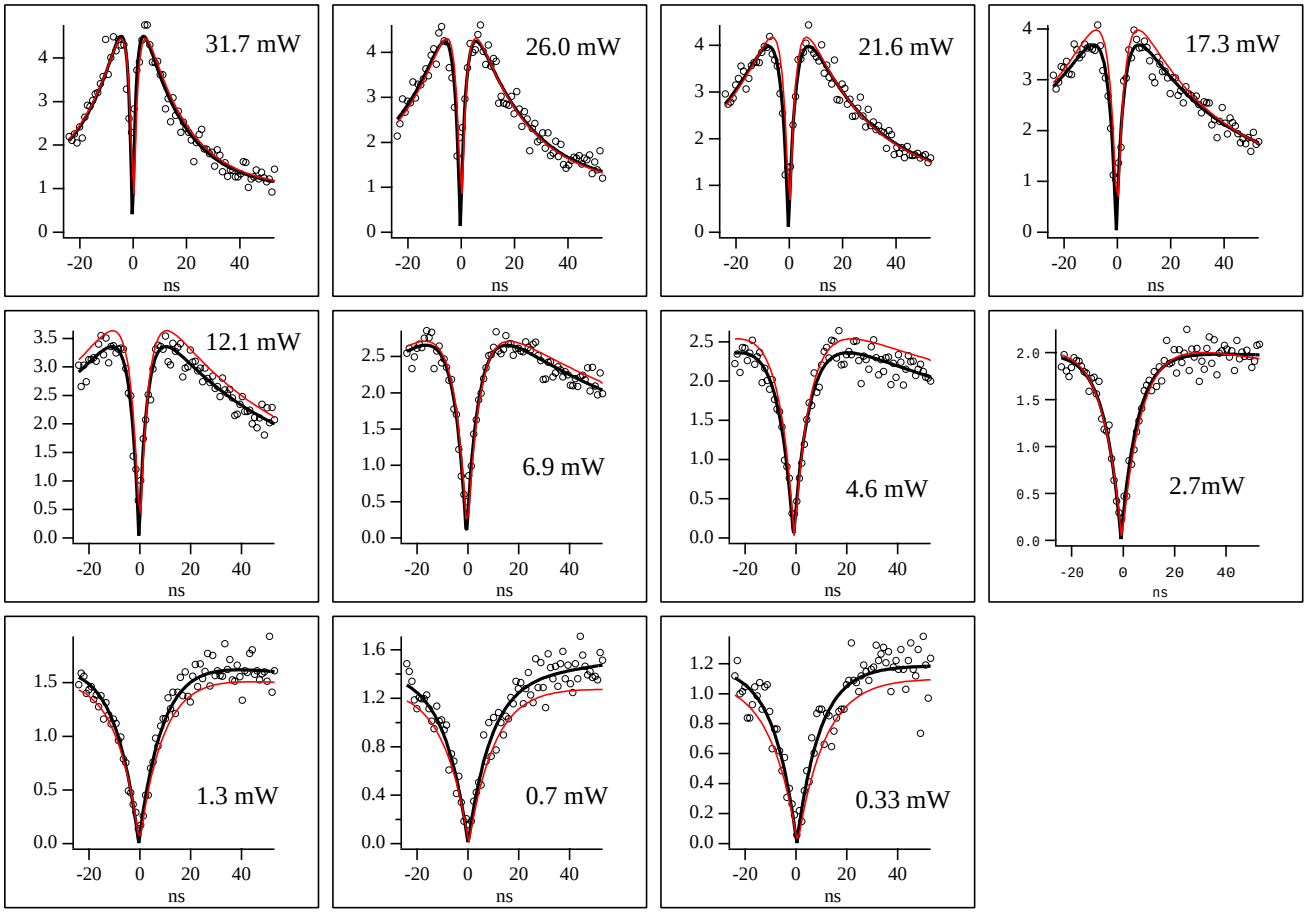


Figure 3.5: *Courbes de dégroupement de photons en fonction de la puissance d'excitation. Les courbes en trait plein sont des ajustements individuels de chaque courbe par un modèle à trois niveaux, les courbes en trait fin le calcul théorique complet à partir de l'évolution des paramètres fournie par le modèle.*

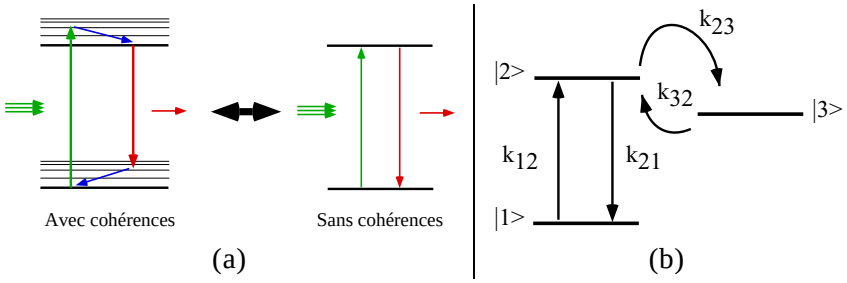


Figure 3.6: *(a) Equivalence entre un système à quatre niveaux et un système à 2 niveaux sans cohérences. (b) Système à trois niveaux utilisé pour modéliser les courbes d'autocorrélations.*

L'évolution des populations du système représenté sur la figure 3.6(b), est régie par le système d'équations différentielles 3.16 :

$$\frac{d}{dt}\begin{pmatrix}\sigma_1\\ \sigma_2\\ \sigma_3\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}k_{12} & k_{21} & 0\\ k_{12} & -k_{21}-k_{23} & k_{32}\\ 0 & k_{23} & -k_{32}\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\sigma_1\\ \sigma_2\\ \sigma_3\end{pmatrix} \tag{3.16}$$

Le terme k_{31} est pris égal à zéro, car l'efficacité quantique du centre NV est proche de un. Le système ne peut se désexciter qu'en émettant un photon, et donc par une transition de l'état excité vers l'état fondamental. Pour résoudre ce système on considère les conditions suivantes : $\sigma_1 = 1$, $\sigma_2 = \sigma_3 = 0$, ce qui correspond au fait qu'un photon vient d'être détecté, et que donc le système est dans son état fondamental (mesure de $g^{(2)}(\tau)$). La solution analytique du système d'équations différentielles 3.16 fournit une équation pour $g^{(2)}(\tau)$:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\sigma_2(\tau)}{\sigma_2(\infty)} = 1 - \frac{1+g_e}{2}e^{-\frac{k_{tm}+k_{1m}}{2}\tau} - \frac{1-g_e}{2}e^{-\frac{k_{tm}-k_{1m}}{2}\tau} \tag{3.17}$$

et la population stationnaire :

$$\sigma_2(\infty) = \sigma_{2\infty} = \frac{k_{12}k_{32}}{k_{12}k_{23}+k_{12}k_{32}+k_{21}k_{32}} \tag{3.18}$$

avec

$$k_{tm} = k_{12}+k_{21}+k_{23}+k_{32} \tag{3.19}$$

$$k_{1m}^2 = \left((k_{12}+k_{21}-k_{23}-k_{32})^2 + 4k_{21}k_{23}\right) \tag{3.20}$$

$$g_e = \frac{2k_{12}k_{23}+k_{32}\left(k_{12}+k_{21}-k_{23}-k_{32}\right)}{k_{1m}k_{32}} \tag{3.21}$$

Les paramètres k_{tm}, k_{1m}, g_e sont obtenus en ajustant les courbes d'autocorrélation d'intensité pour chaque puissance d'excitation. Cet ajustement est reporté en trait plein sur la figure 3.5. Pour obtenir les paramètres photophysiques k_{12}, k_{21}, k_{23} et k_{32} en fonction des valeurs expérimentales k_{tm}, k_{1m}, g_e et $\sigma_2(\infty)$ il faut inverser le système d'équations (3.18, 3.19, 3.20, 3.21) . Cette inversion étant très fastidieuse, nous l'avons laissée aux soins de Mathematica :

$$k_{21} = \frac{\left(k_{tm}^2 - k_{1m}^2 - 2k_{tm}^2\sigma_{2\infty} - 2g_ek_{tm}k_{1m}\sigma_{2\infty} + k_{tm}^2\sigma_{2\infty}^2 + 2g_ek_{tm}k_{1m}\sigma_{2\infty}^2 + g_e^2k_{1m}^2\sigma_{2\infty}^2\right)}{2\left(k_{tm}^2 - k_{1m}^2 - k_{tm}^2\sigma_{2\infty} - 2g_ek_{tm}k_{1m}\sigma_{2\infty} - g_e^2k_{1m}^2\sigma_{2\infty}\right)} \times \left(k_{tm}+g_ek_{1m}\right) \tag{3.22}$$

$$k_{23} = \frac{\left(-1+g_e^2\right)k_{1m}^2\left(k_{tm}^2-k_{1m}^2\right)}{2\left(k_{tm}+g_ek_{1m}\right)\left(-k_{tm}^2+k_{1m}^2+k_{tm}^2\sigma_{2\infty}+2g_ek_{tm}k_{1m}\sigma_{2\infty}+g_e^2k_{1m}^2\sigma_{2\infty}\right)} \tag{3.23}$$

$$k_{12} = \frac{\left(k_{tm}+g_ek_{1m}\right)\sigma_{2\infty}}{2} \tag{3.24}$$

$$k_{32} = \frac{k_{tm}^2-k_{1m}^2}{2\left(k_{tm}+g_ek_{1m}\right)} \tag{3.25}$$

Le paramètre $\sigma_{2\infty}$ est directement lié au taux de comptage relevé sur les PDA, par la formule :

$$N = \eta \times k_{21} \times \sigma_{2_\infty} \tag{3.26}$$

Le taux de comptage du centre NV est mesuré indépendamment pour chaque puissance d'excitation, en effectuant un balayage autour du centre émetteur. Un ajustement par une gaussienne permet d'estimer le fond et le signal venant du centre NV. La courbe de saturation obtenue est représentée sur la figure 3.7.

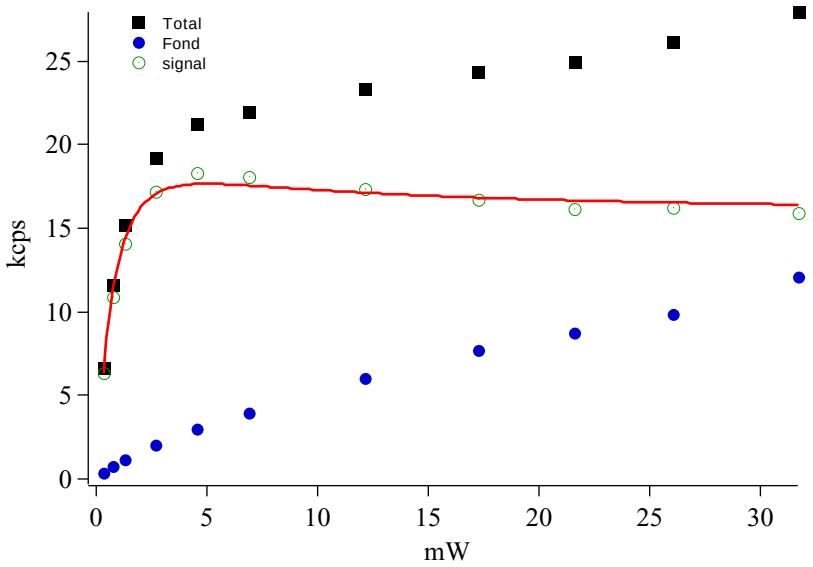


Figure 3.7: *Courbe de saturation d'un centre NV unique. La courbe continue est un ajustement de l'équation 3.28 en tenant compte des valeurs calculées de k_{ij}. Les cercles bleus représentent la lumière de fond émise à côté du centre, et les carrés noirs, le signal au niveau du centre. Les points verts sont simplement la différence des deux courbes, c'est-à-dire le signal provenant d'un centre NV unique.*

On note que l'équation 3.26 ajoute une inconnue dans le système d'équations, qui est l'efficacité de collection η. Les équations 3.22-3.25 ont alors une infinité de solutions. Pour résoudre le système, on injecte l'efficacité de collection déduite dans le paragraphe 2.3 ($\eta = 1.4 \times 10^{-3}$), et on en extrait les coefficients photophysiques k_{ij} en fonction de la puissance d'excitation. On observe que le paramètre k_{21} dépend linéairement avec la puissance d'excitation (fig. 3.8 (a)). Le coefficient directeur de k_{21} varie en fonction de (η) comme le représente la figure 3.8(b).

La dépendance de k_{21} en fonction de la puissance d'excitation n'est pas une solution physiquement acceptable. Notre système ne présente pas d'émission stimulée puisque la longueur d'onde d'excitation est 100 nm dans le bleu de la longueur d'onde d'émission (voir figure 3.6(a)). Le taux d'émission spontanée n'est régi que par la règle d'or de Fermi, qui dépend uniquement de la densité de modes électromagnétiques de l'environnement[3]. Ainsi pour compléter le système d'équations 3.22-3.25 et 3.26, nous introduisons une contrainte physique sur k_{21} :

$$\frac{dk_{21}}{dP} = 0 \tag{3.27}$$

[3]Une étude détaillée sera faite en section 3.6

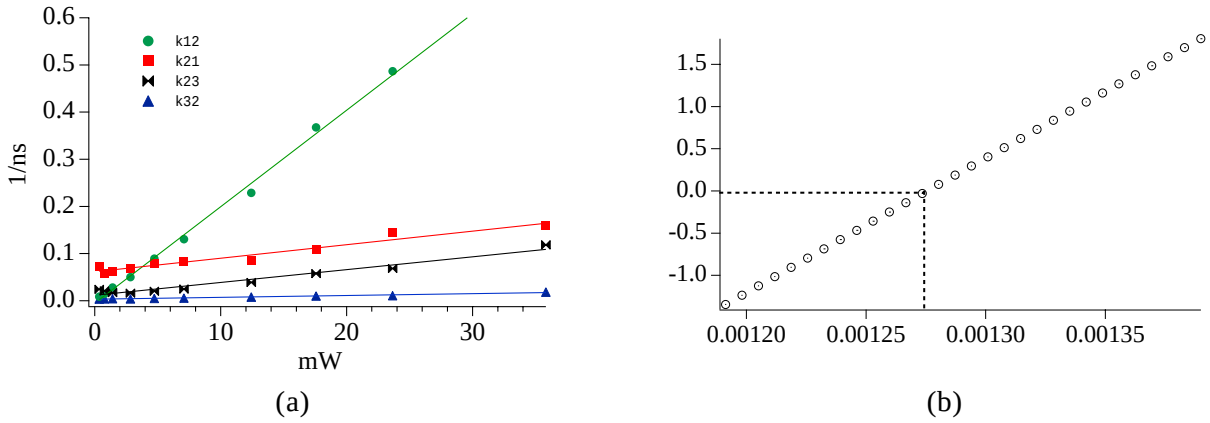


Figure 3.8: *(a) Coefficients k_{ij} pour $\eta \approx 1.4 \times 10^{-3}$. (b) Pente du paramètre k_{21} en fonction de l'efficacité de collection.*

Avec cette condition l'efficacité de collection n'est plus un paramètre libre, mais peut être déduite précisément des mesures effectuées. On obtient ainsi une efficacité de détection de $\eta = 1.27 \times 10^{-3}$ par photodiode. Cette valeur est très proche de l'efficacité de détection estimée au paragraphe 2.3.3.

A l'aide de l'équation 3.26, on déduit la population de l'état excité. A saturation (voir fig.3.7) la population stationnaire vaut $\sigma_{2\infty} = 0.17$. L'état métastable joue donc un rôle important dans la dynamique, puisqu'il est responsable d'une diminution d'un facteur 5.8 du taux de fluorescence. Pour un système à deux niveaux sans cohérence et sans niveau métastable, la population de l'état excité serait égale à 1 [4]. Cette réduction du taux de fluorescence correspond à celle observé par Dräbenstedt *et. al.* [37], mais son origine n'avait pas été clairement interprétée.

3.2.2 Paramètres photophysiques

En utilisant les équations 3.22-3.25 et 3.26 ainsi que la condition 3.27, on peut calculer les coefficients k_{ij} en fonction de la puissance d'excitation sans aucune supposition supplémentaire. Les résultats sont reportés sur la figure 3.9.

Le coefficient k_{12} croit linéairement avec la puissance, ce qui est le résultat attendu, et k_{21} est une constante, puisque ceci correspond à la contrainte imposée. Par contre il faut remarquer que les coefficients k_{23} et k_{32} ne sont pas constants. Ils présentent une dépendance linéaire avec la puissance d'excitation. On remarque aussi que la pente du taux de pompage vers l'état piège (k_{23}) est plus importante que le repompage vers l'état excité.

A puissance nulle les courbes k_{23} et k_{32} tendent vers une valeur non nulle. Le tableau 3.1 reprend la moyenne de valeurs de k_{21}, k_{23}^0 et k_{32}^0 (valeur de k_{ij} a puissance nulle) obtenues sur plusieurs expériences. On remarque que la durée de vie mesurée est proche de celle donnée dans la littérature [32], soit 11.6 ns. On attribue la différence à la précision limitée de nos mesures obtenues en ajustant la formule multi-paramétrique 3.17.

La durée de vie de l'état métastable est d'approximativement $1/k_{32}^0 = 430$ ns sans excitation laser. Le temps moyen pour passer vers l'état métastable est de $1/k_{23}^0 = 185$ ns.

La pente des courbes n'est pas la même d'un centre à l'autre. Ceci n'est pas surprenant, car la pente est reliée à la puissance incidente sur le centre NV. D'une expérience à l'autre, plusieurs causes

[4] Il faut pas oublier que la longueur d'onde d'excitation est différente de celle de l'émission, ainsi le système peut présenter une inversion de population comme c'est le cas dans les lasers.

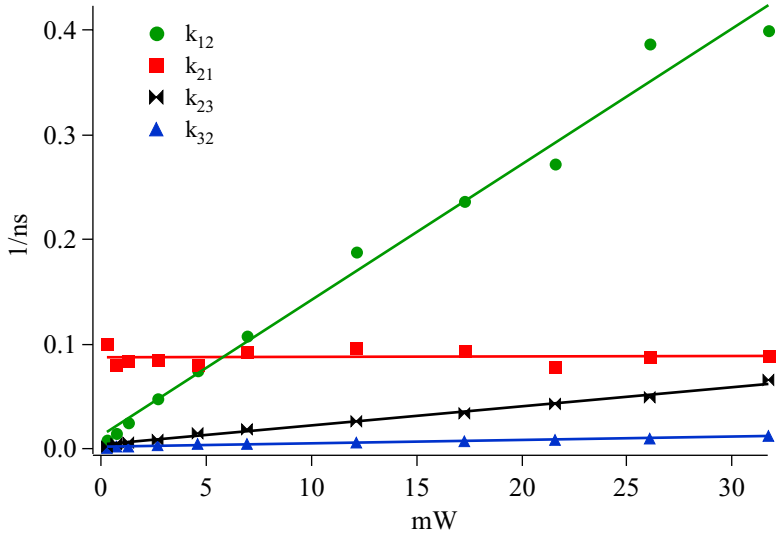


Figure 3.9: *Evolution des paramètres photophysiques d'un centre NV unique en fonction de la puissance d'excitation.*

k_{ij}	taux (ns^{-1})	durée (ns)
k_{21}	0.083 ± 0.002	≈ 12
k_{23}^0	0.0054 ± 0.0022	≈ 185
k_{32}^0	0.0023 ± 0.0006	≈ 430

Tableau 3.1: *Valeurs des coefficients k_{ij} à puissance nulle*

peuvent faire varier cette puissance effective :

- L'orientation du dipôle peut varier d'un centre à l'autre
- En fonction de la profondeur du centre NV dans l'échantillon de diamant, les aberrations sont plus ou moins importantes
- Il peut y avoir des zones d'absorption du faisceau d'excitation au-dessus d'un centre NV.

Sur le tableau 3.2 on indique le coefficient de la pente de k_{ij} par rapport au coefficient directeur de k_{12}. On ne choisit pas l'intensité de saturation comme référence car, comme on le verra plus tard, celle-ci ne correspond pas à la définition habituelle[5].

Pente de k_{ij}	k_{ij}/k_{12}
k_{23}^p	0.103 ± 0.003
k_{32}^p	0.0167 ± 0.0001

Tableau 3.2: *Pente de k_{23}^p et k_{32}^p par rapport à la pente de k_{12}*

La dépendance en intensité de k_{23} est un ordre de grandeur plus importante que la dépendance de k_{32}. On peut conclure que le centre NV est pompé vers l'état métastable de façon efficace, mais que le laser à 532nm ne semble dépeupler que très légèrement l'état métastable.

[5] Habituellement on définit la puissance de saturation comme la puissance à laquelle le nombre de photons émis atteint la moitié de sa valeur maximale.

A l'aide des coefficients k_{ij} estimés pour chaque centre NV, on peut re-calculer la fonction d'autocorrélation théorique. Sur la figure 3.5 le résultat de ce calcul est indiqué en trait fin. On remarque une bonne concordance entre les courbes expérimentales et théoriques. Ceci permet de valider la méthode d'extraction des coefficients photophysiques (k_{ij}) d'un centre NV unique .

Pour terminer cette étude on a étudié la courbe de saturation du même centre que celui utilisé pour enregistrer les courbes d'autocorrélation (fig 3.5). Cette courbe présente une inflexion et décroît pour des fortes puissances d'excitation. La courbe rouge est un ajustement de l'équation 3.28. Les valeurs des k_{ij} sont celles déduites à la section 3.2.2.

$$N = N_0 \times \frac{I/I_s}{1 + I/I_s\,(1 + k_{23}/k_{32})} \tag{3.28}$$

Les seuls paramètres libres sont N_0 et $I_s = k_{21}/k_{12}$. La puissance de saturation obtenue est de 4.1 ± 0.4 mW, en accord avec l'intersection de la courbe k_{12} et k_{21} sur la figure 3.9. Le faisceau d'excitation ayant un diamètre de 570 nm, l'intensité de saturation est donc de 1.56 MW/cm^2. Il est difficile de comparer cette valeur avec celles données dans la littérature car les aberrations sont importantes, et tout le faisceau d'excitation n'est pas focalisé sur le centre NV. L'ajustement du signal de saturation reproduit bien la décroissance du nombre de photons émis par le centre NV unique à forte puissance à cause de l'état métastable.

3.2.3 Discussion pour le passage en régime impulsionnel

D'après ces résultats, nous pouvons estimer la dynamique d'un centre NV lorsqu'il sera excité par une source laser impulsionnelle.

On suppose que le passage vers l'état métastable (et le retour) est essentiellement régi par la valeur des coefficients k_{ij} pour une puissance d'excitation nulle. En effet la durée de l'excitation par le laser impulsionnel est très petite devant les temps caractéristiques du système ($\delta T \ll \Gamma^{-1} < k_{23}^{-1}$).

Le rapport $k_{23}/k_{21} \approx 15$ implique que le centre NV a une chance sur 16 de se retrouver dans l'état métastable par impulsion. Par contre une fois piégé il y restera pendant environ $1/k_{32} = 430ns$. Pour un taux de répétition de 10 MHz, soit une impulsion tous les 100 ns, le centre NV y restera pendant 4 impulsions. Ainsi le centre NV sera dans l'état métastable en moyenne une impulsion lumineuse d'excitation sur 5. La source de photons uniques aura une efficacité de production maximale [6] de $\eta_{prod} = 0.8$ en supposant que la collection est parfaite. Ce résultat est à comparer avec le temps de piégeage et le rapport de branchement de l'état métastable d'une molécule (quelque μs) et des nanocristaux de CdSe (quelques minutes, jusqu'à quelques heures).

3.2.4 Conclusion

Dans cette partie, on a isolé avec succès un centre NV unique et mis en évidence les propriétés quantiques de la lumière émise. Une étude approfondie de la fonction d'autocorrélation en fonction de la puissance d'excitation permet de remonter aux paramètres photophysiques d'un centre NV unique. Cette étude a mis en évidence l'existence d'un état métastable qui est responsable d'une perte de fluorescence d'un facteur 5.8. L'originalité de la méthode utilisée consiste à n'imposer aucun paramètre, mais seulement des conditions physiques. Nous avons par ce moyen déduit de façon fiable l'efficacité de détection de notre montage expérimental.

[6] Nombre de photons émis / taux de répétition

Les résultats obtenus devront être améliorés en vue d'une source de photons uniques pour la cryptographie quantique. En effet le taux de collection reste faible (0.12%), et le fond est important. Si l'on se place à 4 mW (émission max., mais fond min.) il correspond à 10% du signal collecté.

3.3 Autres voies

Le diamant massif offre plusieurs avantages pour débuter les expériences car il est facile à manipuler, et il est commode de pouvoir comparer les résultats obtenus aux nombreuses études déjà publiées.

Cependant il présente des désavantages pour la réalisation d'une source de photons uniques efficace. Le premier obstacle est commun à tous les matériaux possédant un indice de réfraction élevé comme par exemple les matériaux semiconducteurs. A cause de la réflexion totale interne, seulement un faible nombre de rayons optiques traversent la surface[7]. De plus l'ouverture de collection effective de l'objectif de microscope se retrouve réduite dans le rapport des indices entre l'air et le diamant (voir dispositif expérimental chapitre 3). A cela s'ajoute le coefficient de réflexion qui pour une incidence normale est de 17%.

Le second désavantage est plus spécifique au diamant. La multitude de centres colorés[8] à l'intérieur de notre fenêtre d'observation donnera une contribution non négligeable au signal collecté. Or la lumière qui ne provient pas d'un centre NV aura probablement une statistique poissonnienne, et donc brouillera le signal de dégroupement.

Finalement, le diamant massif ne se prête pas à l'insertion des centres NV dans une micro-cavité. Pour observer une exaltation de la fluorescence, grâce au couplage avec la cavité, il faut placer le centre émetteur approximativement à $\lambda/4$ de chaque miroir. Ceci est incompatible avec l'épaisseur des échantillons de diamant massifs, qui est typiquement de $100\mu m$.

Pour éliminer ces problèmes nous avons cherché à isoler des centres NV dans des grains de diamant de très petite taille. Les avantages potentiels sont les suivants :

- Si la taille des nanocristaux utilisés est beaucoup plus petite que la longueur d'onde d'émission (diamètre typique ≈ 50nm), les lois de la réfraction ne s'appliquent plus. Ainsi la lumière émise par un centre NV unique s'échappera dans l'air d'indice de réfraction $n = 1$. La collection sera ainsi bien plus efficace.
- Le volume de diamant irradié par le laser est beaucoup plus petit, et la probabilité d'avoir d'autres centres émetteurs est ainsi réduite. On collectera donc moins de lumière parasite.
- Cette échantillon pourra être plus facilement introduit dans une microcavité pour exalter l'émission spontanée.

Nous avons ainsi étudié des échantillons de diamant créés par croissance CVD, en collaboration avec le Laboratoire d'Ingénierie de Matériaux et des Hautes Pressions (LIMHP) de Villetaneuse. Nous avons essayé plusieurs méthodes de croissance d'échantillons, en dosant le taux de centres NV. Contrairement à nos attentes, nous n'avons pas réussi à créer la bonne concentration à l'intérieur d'un nano-diamant. Il y avait soit trop de centres NV, soit au contraire aucun centre visible. Après environ une année d'étude nous avons abandonné cette voie de recherche.

En parallèle, nous avons aussi étudié les centres NV dans les nanocristaux de diamant. Cette voie de recherche a donné de très bons résultats, qui ont été utilisés pour mettre en place notre source de photons uniques. Dans la suite de ce chapitre, nous allons présenter la préparation des échantillons, puis la mise en évidence d'un centre NV uniques dans un nanocristal de diamant.

[7] Les détails sont présentés dans la partie 2.4

[8] Environ 80 centres sont répertoriés entre 637 nm et 730 nm [34]

Partie B :
Centres NV dans les nanocristaux de diamant

3.4 Préparation des nanocristaux

Les échantillons de nanocristaux de diamant ont été réalisés en collaboration avec Thierry Gacoin du Laboratoire de Physique de la Matière Condensée de l'Ecole Polytechnique. Dans cette partie, j'exposerai la méthode mise au point pour préparer les échantillons. Nous avons procédé par essai et erreur en essayant plusieurs échantillons et en ajustant les paramètres en fonction des résultats obtenus. Les deux paramètres importants sont : la densité des nanocristaux fluorescent dans une zone de balayage, et le nombre de centres NV par grain.

3.4.0.1 La poudre de nanocristaux

L'échantillon de départ est de la poudre de diamant synthétique Ib "Micron+MDA" fournit par de-Beers, dont la taille est garantie entre 0 et 0.5 μm. Cette poudre est largement utilisée dans l'industrie du verre pour le polissage des surfaces. Afin de créer les centres NV, nous procédons (comme pour le diamant massif) à une irradiation électronique puis un recuit pendant $2h$ à 850^oC. L'énergie des électrons est de 1.5 MeV, et la dose d'irradiation de $3 \times 10^{17} e^- cm^{-2}$. On estime que le nombre de centre NV ainsi créés est de ≈ 1 pour un nanocristal d'un diamètre de 30 nm [35].

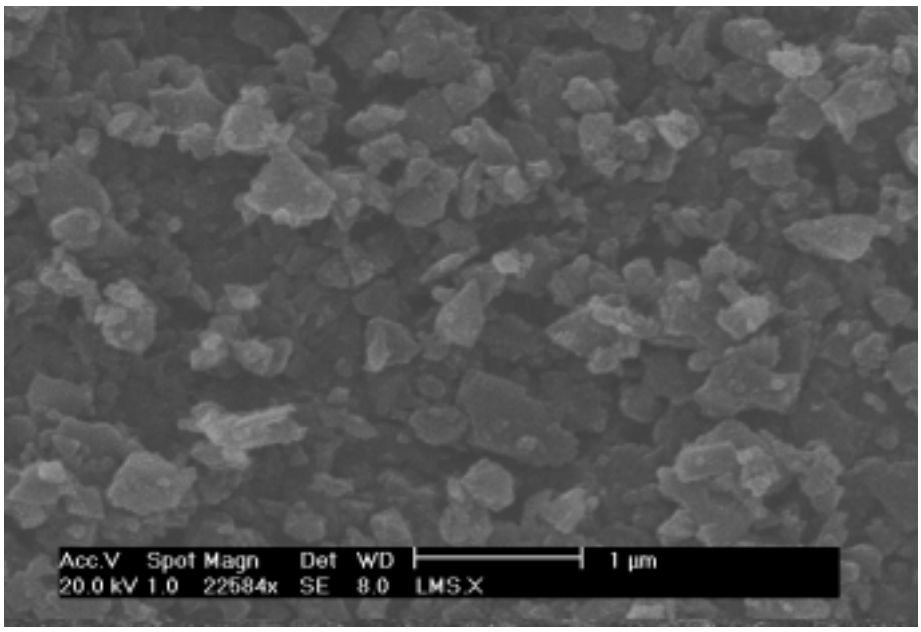


Figure 3.10: *Image de la poudre de nanocristaux avec un microscope électronique à balayage.*

Les figures 3.10 et 3.11 représentent une image des nanocristaux sous microscope électronique à balayage. Les nanocristaux sont très dispersés en taille. Sur l'agrandissement (fig. 3.11) on observe quelques nanocristaux de diamètre inférieur à 100 nm.

Sur les images on remarque que les nanocristaux forment des agrégats. Les plus petits cristaux sont "collés" sur les cristaux de grande taille. Deux phénomènes sont essentiellement responsables de l'agglomération des cristaux de diamant. Le premier est la force de Van der Waals, commune à

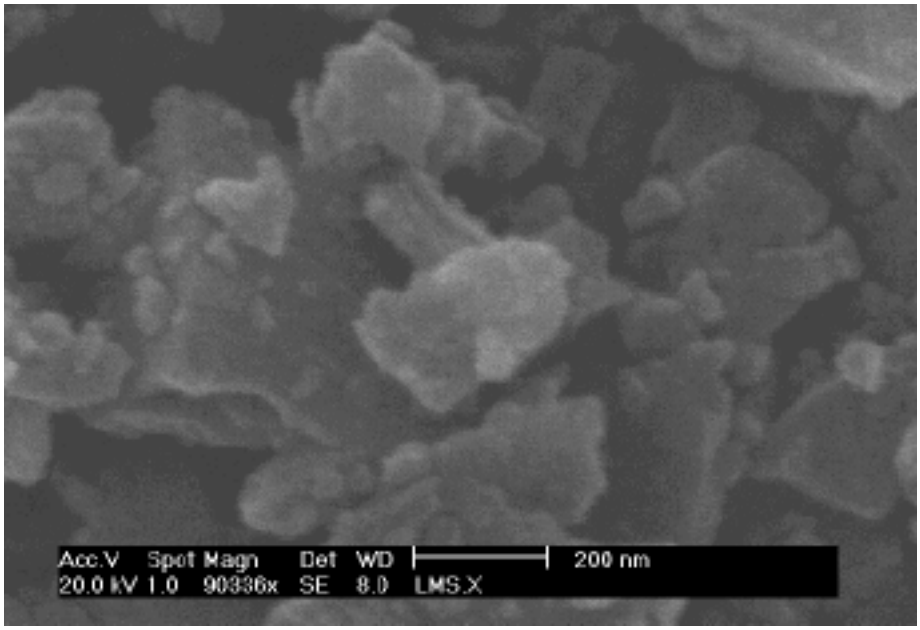


Figure 3.11: *Image de la poudre de nanocristaux avec un microscope électronique à balayage. Agrandissement de la figure 3.10*

tous les cristaux indépendamment de leur nature. Cette force attractive maintient les objets de petite taille l'un contre l'autre pour former un agrégat.

Parallèlement à la force de Van der Waals, l'agrégat peut être maintenu par des liaisons chimiques. En effet, l'existence d'une couche de graphite sur la surface des nanocristaux a pour conséquence d'agglomérer les cristaux. Des études sur les nanotubes de carbone avaient mis en évidence ce phénomène [56].

3.4.0.2 Dissociation des nanocristaux

La poudre de diamant est plongée dans un bain de HNO_3 concentré à 100^oC pendant $1h30$. Ainsi la couche de graphite est retirée de la surface des nanocristaux [56]. La poudre est récupérée par centrifugation, puis elle est nettoyée avec de l'eau désionisée.

A ce stade de la préparation on obtient environ 100 mg de poudre nettoyée du graphite résiduel, ainsi que d'autres molécules qui ont pu s'y agréger. Bien que l'on ait nettoyé les nanocristaux du graphite, des agglomérats peuvent toujours se former grâce à l'attraction de Van der Waals. Pour éviter ce phénomène, la poudre est alors dispersée dans 20 ml d'isopropanol contenant 1% en masse de Poly-Vinyl-Pyrrolidone (PVP). On a choisi ce polymère, à cause de ses bonnes propriétés de mouillage de surface. Ainsi on est assuré d'avoir une bonne interaction avec les nanocristaux. La solution est ensuite plongée dans un ultrasonificateur pour dissocier les agrégats. Dès la séparation, le polymère recouvre la surface et empêche la formation de nouveaux agglomérats. Après sonification on obtient des grains isolés en suspension, de diverses tailles, et quelques agglomérats résiduels. La sonification n'est bien sûr pas capable de casser un cristal de diamant.

Remarque : Les nanocristaux étant en contact avec le polymère il est important que ce dernier ne présente pas de fluorescence dans la fenêtre spectrale d'obsérvation. Des mesures sur un substrat de silice montrent que la fluorescence d'une couche de 30 nm de polymère est indiscernable de celle du substrat.

3.4.0.3 Sélection en taille des nanocristaux

L'étape suivante de la préparation des nanocristaux consiste à trier en taille la solution obtenue précédemment. Pour cela la solution de nanocristaux est placée dans un tube de centrifugation et centrifugée pendant quelques dizaines de minutes. Le surnageant est ensuite prélevé et séparé du culot de centrifugation. La taille des grains ainsi prélevés est mesurée par diffusion dynamique de la lumière (DDL). La méthode consiste à mesurer la fluctuation d'intensité, produit par les nanoparticules qui traversent la zone d'observation. Par l'autocorrélation d'intensité on remonte au temps caractéristique de passage, qui est directement lié à la taille de la particule donnée par l'équation de diffusion de Stokes. Le mouvement brownien des petites particules est en effet plus rapide que celui des grosses particules. Cette méthode permet de mesurer des tailles de nanocristaux jusqu'à 3 nm de diamètre.

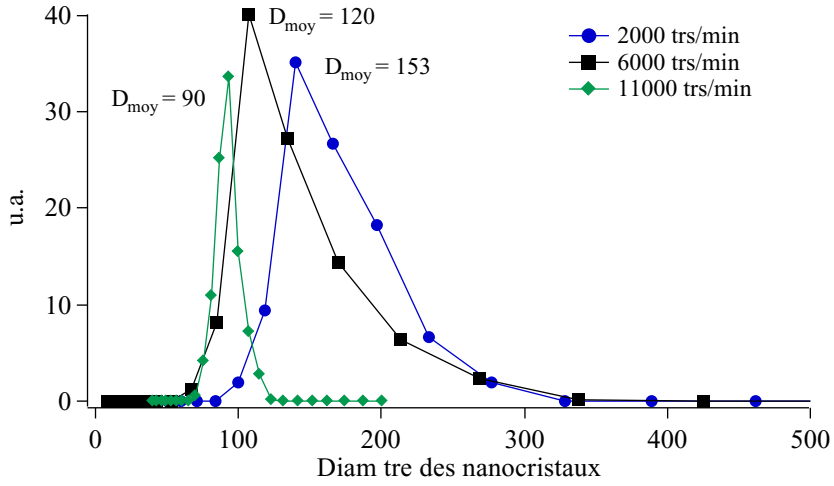


Figure 3.12: *Distribution en taille des nanocristaux en fonction de la vitesse de rotation, après* $15'$ *de centrifugation.*

La figure 3.12 représente la distribution en taille des nanocristaux en fonction de la vitesse de centrifugation. Conformément à notre attente, plus la centrifugation se fait à grande vitesse, moins il reste de gros nanocristaux. Par contre pour des vitesses supérieures à 11000 tours / min, on observe une absence totale du signal de DDL. On peut expliquer ce fait, en supposant qu'il n'y a pas, ou peu, de grains de taille inférieure à 50 nm. Nous avons choisi de travailler avec les échantillons centrifugés à 11000 tours / min, car leur diamètre est compatible avec notre condition $d \ll \lambda/n = 700/2.4 = 300$ nm. De plus ils ont une faible dispersion en taille.

3.4.0.4 Dépôt

Finalement, une goutte contenant les nanocristaux dispersés et triés en taille est déposée sur le substrat de notre choix. Le dépôt se fait à la tournette à une vitesse de 2000 tours / min. La goutte est étalée sur tout le substrat grâce à la force centrifuge. Après la rotation, les nanocristaux sont en suspension dans un film de quelques micromètres d'épaisseur. Après évaporation du solvant, il ne reste sur le substrat que les nanocristaux et un film de polymère d'une épaisseur d'environ 30 nm qui les entoure. Tous les grains sont sur le même plan. L'épaisseur du film de polymère est évaluée avec un microscope à force atomique (AFM) pour un échantillon sans nanocristaux, en mesurant la profondeur d'une rainure créée avec une pointe.

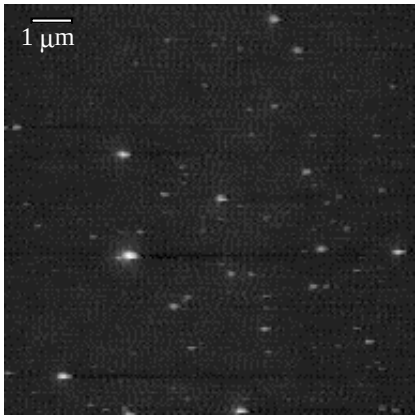


Figure 3.13: *Image AFM d'un dépôt centrifugé à* 11000 *tours/min. La région observée a une taille de* $10 \times 10\mu m$

La figure 3.13 représente une image à l'AFM d'un échantillon de nanocristaux déposé sur un substrat de silice. Le nombre de nanocristaux visibles sur la figure semble élevé, mais expérimentalement (Chapitre 3) tous les grains ne fluorescent pas. Sur la figure 3.14 nous avons reporté le nombre de centres fluorescents en fonction du temps de centrifugation. La concentration idéale étant approximativement de 5 centres par 100μm^2, nous choisissons un temps de centrifugation entre 20 et 30 minutes.

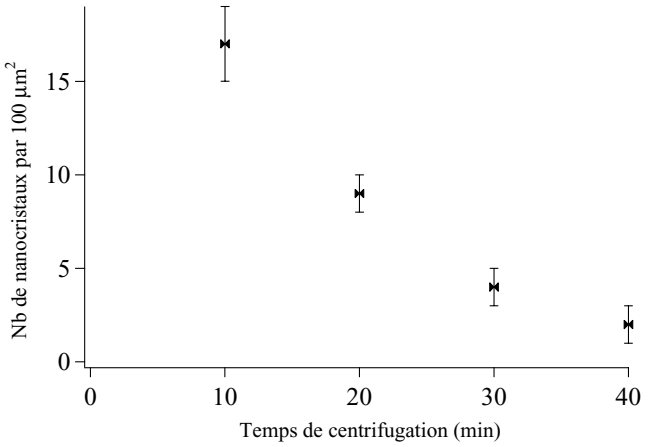


Figure 3.14: *Nombre de nanocristaux fluorescents dans une zone de* $10 \times 10\mu m^2$ *en fonction du temps de centrifugation*

Les nanocristaux sont déposés soit sur un substrat de silice (chap. 3), soit sur des miroirs diélectriques (section. 5.3.1). On utilise des lames de silice au lieu de lamelles de verre à cause de leur faible fluorescence. Avec notre microscope confocal, nous avons mesuré qu'une lamelle de verre à un taux de fluorescence approximativement de 7000 photons par seconde sous excitation continue, avec une puissance du laser de 8 mW pour une taille de spot au niveau du foyer de l'objectif d'environ 500 nm de diamètre (λ = 532 nm). Le taux de comptage pour une lamelle de silice est approximativement 10 fois moindre. Ces lames ont une épaisseur de 0.17 mm, puisque l'objectif à immersion est corrigé pour cette épaisseur de lamelle de microscope (voir section 2.3).

3.5 Etude d'un centre NV dans un nanocristal de diamant

L'utilisation de nanocristaux de diamant présente plusieurs avantages. Premièrement, leur taille est inférieure à la longueur d'onde d'excitation et d'émission. L'optique géométrique n'est plus valable, et les effets de réfraction ne sont plus pris en compte. Ainsi, on peut éliminer l'effet des aberrations optiques[9], et améliorer l'efficacité de collection géometrique. Cette dernière passe de $\eta_{coll}^{massif} = 0.08$ à $\eta_{coll}^{nano} = 0.3$. Les nanocristaux de diamant sont aussi plus propices a être utilisés dans des micro-cavités ou bien simplement sur des miroirs diélectriques (voir section 5.3.1) et on peut les manipuler beaucoup plus facilement que le diamant massif. Enfin, on s'attend à une diminution importante du bruit de fond, puisque le volume de matière excité, pour un nanocristal de 50nm de diamètre est 4 ordres de grandeurs plus faible que le volume excité dans le diamant massif.

Dans la suite de la section, nous allons présenter les résultats obtenus pour un centre NV dans un nanocristal de diamant[10]. Les nanocristaux sont déposés sur une lamelle de silice d'épaisseur 0.17 mm comme le représente la figure 3.15. L'objectif de microscope est corrigé des aberrations si l'échantillon se trouve en dessous d'une lamelle de microscope.

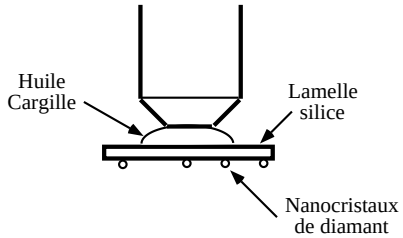


Figure 3.15: *Montage expérimental pour l'observation de nanocristaux de diamant.*

3.5.1 Mise en évidence d'un centre NV unique

La recherche d'un centre NV unique dans un nanocristal de diamant diffère peu de celle dans le diamant massif. Après avoir identifié le plan focal sur lequel sont déposés les nano-cristaux, on balaye l'échantillon à la recherche de points lumineux. La courbe d'autocorrélation nous permet de connaitre le nombre de centres NV dans un nanocristal. En moyenne, on en observe 8 centres par nanocristal. Trouver un nanocristal avec un seul centre NV est fastidieux, et demande de la patience.

Sur la figure 3.16 (courbe de droite) on a représenté la fonction d'autocorrélation d'un centre NV unique. Le signal de dégroupement montre bien que l'on a isolé un seul centre NV dans le nanocristal de diamant.

Dans le cas des nanocristaux de diamant, la correction du fond n'est pas aussi directe que pour le diamant massif. En effet le fond observé inclut deux contributions, provenant d'une part du substrat de silice, et d'autre part du nanocristal lui-même. Nous pouvons procéder à la soustraction de la contribution du substrat comme cela a été présenté dans la section 3.1.2.4. Mais l'autre contribution n'est pas distincte spatialement de la fluorescence du centre NV, et donc ne peut pas être mesurée directement. La courbe $g^{(2)}(\tau)$ de la figure 3.16 représente les courbes d'autocorrélation corrigées du fond mesurable. Pour le nanocristal de diamant, même après correction, la fonction d'autocorrélation ne s'annule pas.

[9] $\eta_{abb} = 0.2$ dans le diamant massif

[10] Cette étude est publié dans [57]

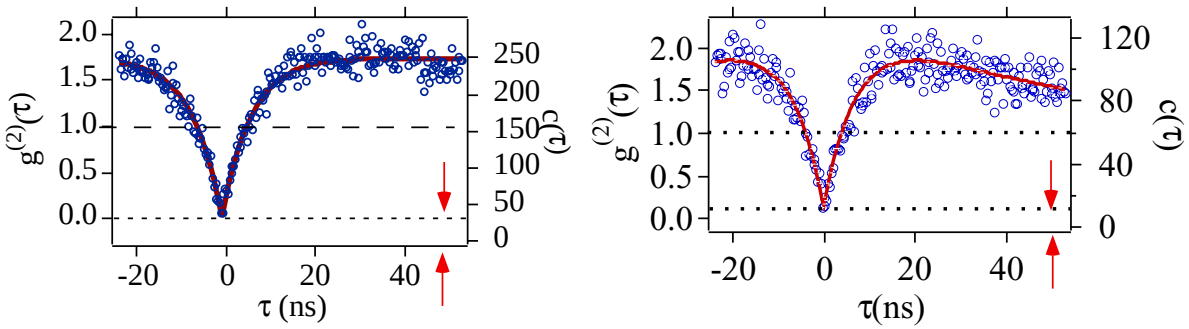


Figure 3.16: *Courbe d'autocorrélation pour un centre NV dans le diamant massif (gauche) et dans un nanocristal de diamant (droite). L'axe de droite présente la fonction d'autocorrélation brute, l'axe de gauche la fonction normalisée et corrigée du fond (enregistré à côte du cristal).*

Mais dans le cadre de la mise en place d'une source de photons uniques, la valeur de la fonction d'autocorrélation corrigée du fond n'est pas la quantité intéressante. En effet, il n'est pas possible dans une expérience de cryptographie quantique de discriminer entre un photon du fond et un photon provenant du centre NV. La quantité importante devient alors simplement le facteur $C_N(0)$ "non corrigé", qui représente la valeur de la fonction d'autocorrélation à $\tau = 0$ après normalisation.

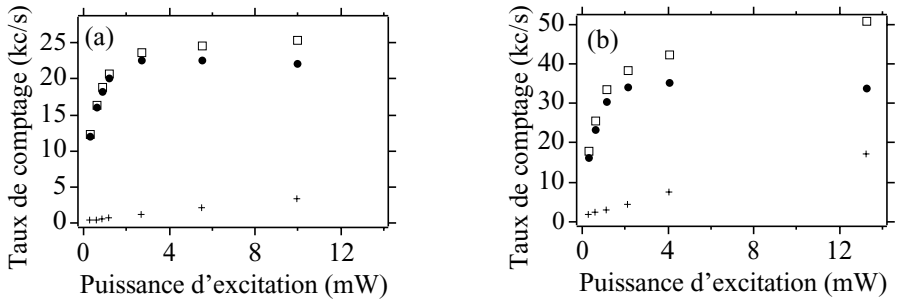
Dans les deux cas, nous avons mesuré le facteur $C_N(0)$. On obtient $C_N^{massif}(0) = 0.26$ pour le diamant massif et $C_N^{nano}(0) = 0.18$ pour les nanocristaux de diamant. Il y a une nette amélioration entre le centre NV dans le diamant massif, et le centre NV dans le nanocristal de diamant. On peut extraire $\rho = S/(S+B)$ et donc le rapport signal à bruit par le biais de la formule 3.14 puisque $C_N^{corr}(0) = 0$. Le rapport S/B est donné par la formule $S/B = \rho/(1-\rho)$. Il vaut 6 dans le cas du diamant massif et 10 pour les nanocristaux de diamant. Remarquons que la valeur de $C_N(0)$ mesurée sous excitation continue est une borne supérieure, à cause de la gigue temporelle des photodiodes à avalanches, puisqu'on ne résoud pas complètement le pic à $\tau = 0$

Lors du passage en excitation impulsionnelle, la probabilité d'avoir deux photons dans une impulsion sera donnée par $p_2 = C_N(0)p_1^2/2$. Une discussion plus détaillée sera faite dans le chapitre 5. En utilisant les centres NV dans les nanocristaux de diamant, le nombre d'impulsions contenant deux photons sera réduit d'un facteur 5.5, contre seulement 3.8 pour le diamant massif.

3.5.2 Efficacité de collection

Une des motivations pour passer du diamant massif aux nanocristaux de diamant, est le gain en efficacité de collection. La taille sub-longueur d'onde du cristal doit contribuer à ce que l'effet géométrique de la réfraction ne gêne plus la collection des photons émis. Or les courbes de saturation expérimentales (figure 3.17) semblent indiquer que l'on collecte moins de photons par seconde dans le cas des centres NV dans les nanocristaux de diamant.

Le nombre de photons collectés par seconde et par photodiode est à saturation ($P \approx 2.5$mW dans les deux cas) $N^{Massif} = 33000$ contre seulement $N^{Nano} = 22000$. Mais le nombre de photons collectés dépend de la durée de vie et de l'efficacité de collection. En effet (voir paragraphe suivant) la durée de vie d'un centre NV dans le diamant massif est de $\Gamma^{massif} = 11.6$ns, mais pour un centre NV dans un nanocristal de diamant elle vaut $\Gamma^{nano} \approx 25$ns. Il faut donc comparer le nombre de photons collectés par rapport à la durée de vie de l'émetteur. On obtient alors $3.7 \cdot 10^{-4}$ (photons / durée de vie) pour le diamant massif, et $5.5 \cdot 10^{-4}$ (photons / durée de vie) pour le nanocristal de diamant, soit une augmentation d'un facteur de 1.5. Dans cette comparaison, nous n'avons pas tenu compte de la



Nanocristaux de diamant Diamant massif

Figure 3.17: *Courbe de saturation pour le centre NV dans le diamant massif et les nanocristaux de diamant. Le trou de filtrage a un diamètre de* $100\mu m$*. Les croix représentent le fond mesuré à côte du centre NV, les carrés le signal observé au niveau du centre NV, les cercles sont la soustraction de ces deux valeurs et représentent le nombre de photon émis par un centre NV.*

population de l'état excité, en prenant en compte l'état métastable (voir section 3.2). En fait, l'étude photophysique des nanocristaux de diamant n'est pas aussi simple que celle du diamant massif, car la contribution du fond ne peut pas être totalement soustraite. Néanmoins les mesures effectuées montrent que la population de l'état excité est approximativement la même que pour le diamant massif.

3.5.2.1 Discussion sur l'efficacité de collection

Le point sur l'efficacité de collection : Pour les expériences avec les nanocristaux, nous avons remplacé l'objectif Nachet, par un objectif Zeiss de même ouverture numérique. Nous avons aussi changé la taille du trou de filtrage de 50nm à 100nm. Pour le diamant massif on remarque une augmentation du nombre de photons collectés : on passe de 18000 photons par seconde dans la courbe 3.7 à 35000 sur la courbe 3.17. Ainsi en tenant compte du fait que la population de l'état excité pour un centre NV dans le diamant massif est de $\sigma = 0.17$, on obtient que notre nouvelle efficacité de collection est $\eta^{massif} = 0.0024$ et donc $\eta^{nano} = 0.0036$ par photodiode.

L'augmentation de l'efficacité de collection n'est pas aussi importante que celle prévue théoriquement. On avait alors fait l'hypothèse que les aberrations causées par l'interface diamant / air disparaîtraient complètement. Mais expérimentalement nous avons introduit une autre interface entre deux indices différents. En effet (voir fig 3.15), on traverse une lamelle de silice ($n_{sil} = 1.46$) avant d'arriver sur les centres NV. Or l'objectif de microscope est corrigé pour une lamelle de verre ($n_{verre} = 1.51$). et cette différence d'indice entre les deux matériaux à un rôle non négligeable pour des grandes ouvertures numériques.

Nous avons aussi mis en évidence que l'objectif à immersion utilisé initialement présentait des aberrations excessives, peut-être dues à une dégradation de ses performances au cours du temps (cet objectif faisait partie du "fond historique" de l'Institut d'Optique). Ces problèmes ont été identifiés tardivement, et les mesures d'efficacité de collection n'ont pas toutes été reprises. Néanmoins, mis à part les valeurs absolues des taux de comptage, toutes nos conclusions sur les centres NV restent valables.

Précisons enfin que, dans la version finale de l'expérience (section 5.3), nous avons placé les nanocristaux contenant les centres NV sur un miroir diélectrique, et nous avons utilisé un objectif

métallographique neuf. Nous avons alors observé une augmentation du nombre de photons collectés à saturation d'un facteur proche de 10.

3.6 Effet de l'indice sur la durée de vie

Comme nous l'avons mentionné ci-dessus, les durées de vie mesurées pour un centre NV dans un nanocristal de diamant et dans le diamant massif ne concordent pas. Un calcul rapide montre que le rapport des durées de vie est approximativement égal au rapport des indices entre le diamant et l'air. Dans ce paragraphe, nous allons donner une interprétation de cet effet.

L'émission spontanée est un phénomène fondamental de tous les systèmes quantiques en équilibre avec leur environnement [58]. L'émission spontanée est souvent introduite dans les cours de mécanique quantique comme un terme d'amortissement dans les équations qui régissent l'évolution des populations des niveaux atomiques. Mais il ne faut pas en conclure que le taux d'émission spontanée est une propriété intrinsèque de l'atome étudié. En effet, dans une étude quantique du champ électromagnétique, ce taux dépend en fait du couplage du dipole étudié avec les modes vides du champ électromagnétique [23]. En 1946, Purcell [59] montra que le taux d'émission spontanée peut être modifié en changeant l'environnement de l'émetteur. Les premières expériences ont été réalisées par Drexhage en 1970. Il a mis en évidence une modification du taux de fluorescence de l'europium devant un miroir métallique [60, 61]. Deux autres expériences ont montré l'inhibition [62] et l'exaltation [63] de l'émission spontanée d'atomes couplés à des microcavités. Dernièrement l'effet Purcell a aussi été mis en évidence dans des expériences avec des boîtes quantiques dans des microrésonateurs [64, 65] et des microcavités semiconductrices [66].

3.6.1 Durée de vie

Une étude précise des paramètres photophysiques d'un centre NV dans un nanocristal de diamant s'est révélée difficile, car les valeurs des k_{ij} déduites en fonction de la puissance présentent une grande dispersion, surtout à forte puissance. En particulier, les ajustements linéaires obtenus pour le diamant massif ne sont plus vérifiés, peut-être à cause d'une correction du fond incomplète.

Néanmoins, on observe que la courbe $g^{(2)}(\tau)$ est beaucoup plus large à faible puissance pour les nanocristaux que pour le diamant massif. Ceci indique que la durée de vie est probablement modifiée. Pour mesurer la durée de vie, on fait l'hypothèse que pour des faibles puissances d'excitation ($I < I_{sat}$) et des temps courts, on peut ignorer l'état métastable. Ainsi on se retrouve avec un simple système à deux niveaux et la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-(r+\Gamma)\tau} \tag{3.29}$$

où r est le taux de pompage, et Γ^{-1} la durée de vie. En traçant $(r + \Gamma)$, et en extrapolant à $r = 0$, on obtient la durée de vie d'un centre NV. Sur la figure 3.18 on reporte la valeur de $(r + \Gamma)$ en fonction de r pour un centre NV dans le diamant massif (carrés blancs), et dans un nanocristal (cercles noirs).

Pour le centre NV dans le diamant massif, on obtient une durée de vie de $11.6ns$, en accord avec d'autres travaux [32]. Par contre pour le centre NV dans le nanocristal, la valeur est de $25 \pm 4ns$, mesurée de manière reproductible sur une dizaine de centres NV.

Remarquons que les expériences en excitation impulsionnelle, détaillées au paragraphe 5.2.2.1, confirment le changement de durée de vie. La méthode de mesure est plus précise dans ce cas, et la valeur obtenue est 23.4 ± 0.5 ns. La dispersion des mesures en excitation continue est plus importante que sous excitation impulsionnelle, ce qui peut être attribué à la méthode employée. En effet, dans

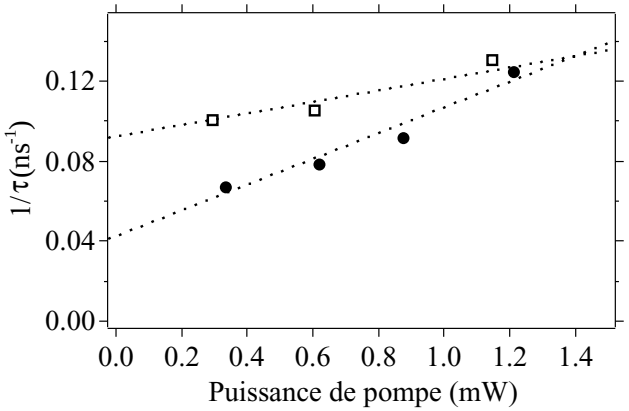


Figure 3.18: *Valeur expérimentale de $k_{12} + k_{21}$ en fonction de la puissance d'excitation. Les carrés blancs représentent un centre NV dans le diamant massif, les cercles noirs un centre NV dans un nanocristal.*

le premier cas, on extrapole la courbe $r + \Gamma$ à partir d'un ajustement de quelques points, ces points étant eux-mêmes un ajustement d'une courbe expérimentale. La deuxième méthode consiste tout simplement à mesurer le temps de décroissance de la population, et donne directement la valeur de la durée de vie.

3.6.2 Taux d'émission spontanée et Règle d'or de Fermi

On considère un système quantique à deux niveaux ($|g\rangle$, $|e\rangle$) d'énergie ($\Delta E = E_e - E_g$), et un continuum d'états α d'énergie E. Le couplage entre les deux états est décrit par le couplage dipôle-vide. La règle d'or de Fermi décrit, dans le cas perturbatif, le taux d'émission spontanée, c'est-à-dire, le taux de désexcitation de l'état $|e\rangle$ vers l'état $|g\rangle$, accompagné de l'émission d'un photon, qui vaut :

$$\Gamma_n = \frac{2\pi}{\hbar}\Sigma_\epsilon \int d\Omega | < e, 0|d \cdot E^+|g, 1 > |^2 \rho(\omega) \tag{3.30}$$

où d est l'opérateur dipole, E^+ la partie de fréquence positive de l'opérateur champ électromagnétique, et où l'on somme sur la polarisation ϵ et la direction Ω du photon émis. Pour un émetteur dans un milieu d'indice n, $\rho(\omega)$, la densité de modes électromagnétiques du vide par unité d'énergie pour une fréquence angulaire ω, vaut :

$$\rho(\omega) = \frac{n^3\omega^2}{\pi^2\hbar c^3} V = n^3 \rho_v(\omega) \tag{3.31}$$

où V représente le volume de quantification du champ électromagnétique. De plus, en notant ε_0 la permittivité du vide, et ε_r la permittivité relative du milieu, le module carré du champ électrique dans un milieu d'indice n s'écrit :

$$E_n^2 = \frac{\hbar\omega}{2\varepsilon_0\varepsilon_r V} = \frac{E_v^2}{n^2} \tag{3.32}$$

En insérant les équations 3.31 et 3.32 dans 3.30 on obtient le taux d'émission spontanée d'un dipôle dans un milieu d'indice n en fonction de son taux d'émission spontanée dans le vide.

$$\Gamma_n = n \cdot \Gamma_0 \tag{3.33}$$

Ainsi un dipôle dans un milieu d'indice n, émet n fois plus de photons par seconde que le même dipôle dans le vide.

3.6.3 Correction du champ local

Dans la dérivation de la formule 3.33, nous avons implicitement supposé que le champ électrique est complètement décrit en quantifiant les équations de Maxwell macroscopiques, c'est-à-dire que l'état du champ dans le milieu diélectrique ne prend pas en compte les effets microscopiques sur le champ entourant le dipôle. Pourtant il est bien connu qu'un dipôle dans un milieu diélectrique polarise le milieu environnant [67]. Pour tenir compte de ces effets, il faut introduire des corrections de champ local. L'équation 3.33 devient alors :

$$\Gamma_n = n \cdot \xi \cdot \Gamma_0 \tag{3.34}$$

où ξ est la correction du champ local, dépendant du modèle choisi.

Pour calculer le champ local, il faut choisir le type de cavité qui entoure le dipôle, ce qui est un problème délicat.

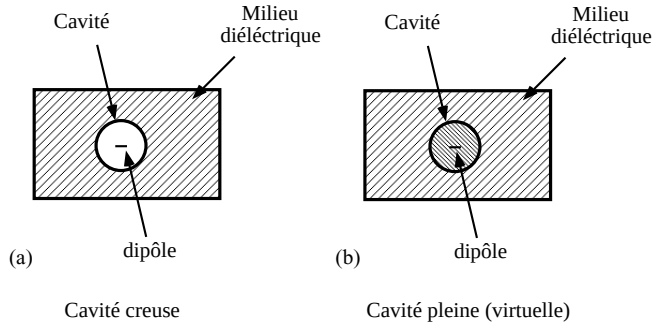


Figure 3.19: *Différentes modélisations de l'effet du champ local.*

Si on suppose que l'émetteur est réellement à l'intérieur d'une cavité sphérique creuse (fig. 3.19a), la formule du champ local est donnée par [68] :

$$\xi = \left(\frac{3n^2}{2n^2 + 1} \right)^2 \tag{3.35}$$

On peut aussi choisir une cavité pleine (ou cavité virtuelle) (fig.3.19b), qui décrit une cavité remplie avec un milieu ayant la même polarisation moyenne que le diélectrique entourant la cavité. Par contre le dipôle à l'intérieur de la cavité ne contribue pas au champ local. Dans ce cas, le champ local est décrit par [69, 70, 71]

$$\xi = \left(\frac{n^2 + 2}{3} \right)^2 \tag{3.36}$$

Plusieurs expériences ont été réalisées pour déterminer lequel de ces deux modèles décrit le mieux l'effet du champ local[72, 73, 74, 75, 76, 77]. Dans ces expériences, le dipôle étudié est une molécule ou un ion d'erbium, mais la réalisation expérimentale est difficile. Il faut en effet choisir astucieusement le milieu d'indice n dans lesquel l'expérience aura lieu, pour contrôler au mieux les effets chimiques et mécanique sur le système étudié. Il faut aussi noter que le milieu environnant peut créer des voies de desexcitation non-radiatives, qui ont pour effet de diminuer la durée de vie de l'émetteur.

3.6.4 Changement de durée de vie pour les centres NV

Comment s'applique alors la théorie décrite ci-dessus dans notre contexte ? D'après la figure 3.18 on voit clairement un changement de durée de vie (extrapolation à $r = 0$) entre un centre NV dans un nanocristal de diamant (Γ_{nc}) et un centre NV dans le diamant massif (Γ_m). On obtient $\Gamma_{nc}^{-1} = 25 \pm 4$ ns et $\Gamma_m^{-1} = 11.6 \pm 1$ ns de durée de vie respectivement. Le rapport des taux d'émission spontanée est égal à $\Gamma_m/\Gamma_{nc} = 2.1$.

D'après la figure 3.15 on remarque que les nanocristaux de diamant d'indice n_d ne sont pas complètement dans le vide : ils sont posés sur une lamelle de silice d'indice n_s. Pour évaluer approximativement l'effet de cette lamelle sur l'émission spontanée, on découpe l'espace en deux demi-sphères. On considère alors que le centre NV émet dans le vide ($n = 1$) dans la partie inférieure, et donc que $\Gamma_{nc} = \Gamma_m/n_d$, et qu'il émet dans la silice ($n = n_s$) dans la moitié supérieure, avec $\Gamma_{nc} = n_s\Gamma_m/n_d$. Le taux d'émission du centre NV dans le nanocristal de diamant, en tenant compte du dispositif expérimental est donc donné par

$$\Gamma_{nc}^{th} = \frac{1}{2}\left(\frac{\Gamma_m}{n_d} + \frac{\Gamma_m n_s}{n_d}\right) = \frac{1}{2}\left(\frac{1+n_s}{n_d}\right)\Gamma_m \tag{3.37}$$

On obtient ainsi une durée de vie théorique du centre NV dans un nanocristal de diamant de $\Gamma_{nc}^{-1} = 22.7$ ns. Notre résultat expérimental concorde bien avec cette valeur théorique. A titre de comparaison, on peut calculer la durée de vie théorique donnée par les formules 3.35 et 3.36 dans le cas d'un champ local. Le tableau 3.3 résume les différentes valeurs.

Remarquons que la formule obtenue est uniquement valable lorsque le diamètre du nanocristal est petit devant la longueur d'onde d'émission à l'intérieur du cristal (soit $700/2.4 = 300$nm). Cette condition est toujours vérifiée dans nos expériences.

Massif	Expérimental	Sans correction	Cavité Creuse	Cavité Pleine
11.6 ns	25 ± 4 ns (CW); 23.4 ± 0.5 ns (Imp)	22.7 ns	53 ns	185 ns

Tableau 3.3: *Durée de vie en fonction du modèle théorique*

Discussion La théorie sans effet de champ local semble donc être la seule en bon accord avec nos expériences. Pour interpréter ce résultat, remarquons que le centre NV n'existe que dans la maille cristalline de diamant, et que son entourage fait partie intégrante de son existence. Or son voisinage, qui s'étend sur quelques mailles cristallines (soit quelques nanomètres), est le même dans le diamant massif ou dans un nanocristal de diamant (fig. 3.20). Ceci implique que le champ local ressenti par un centre NV dans le diamant massif et dans les nanocristaux de diamant est identique. Une vérification (grossière) de cette hypothèse peut se faire en comparant les spectres d'émission d'un centre NV dans le diamant massif et dans un nanocristal, qui sont bien identiques à la résolution de notre système (soit 3 nm).

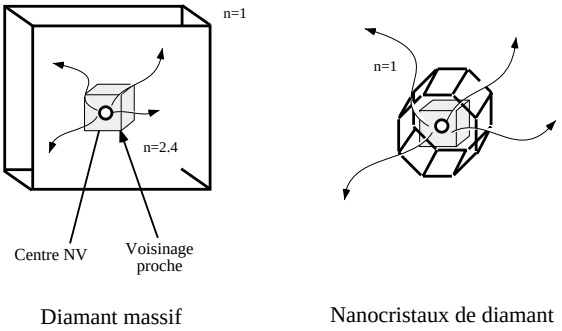


Figure 3.20: *Représentation d'un centre NV dans le diamant massif et dans un nanocristal de diamant. Le voisinage du centre NV est une partie indissociable du centre.*

On peut remarquer que les points expérimentaux d'un centre à l'autre sont dispersés. Ceci peut être attribué à divers effets. Ainsi, nous avons supposé que le centre NV voit 50% d'air et 50% de matériau d'indice 1.5, mais cette proportion peut en fait varier de manière significative, à cause du recouvrement variable du nanocristal par le polymère. De plus, les variations d'orientation du dipôle par rapport à l'interface air / silice [78, 79, 80] entraînent aussi une dispersion des valeurs observées. Enfin, il est possible que certains centres NV soient à l'intérieur de nanocristaux de plus grand diamètre, et qu'on ne puisse pas complètement négliger les effets de cavité.

Dans cette étude, nous avons donc mis en évidence le changement de la durée de vie en fonction de l'indice de réfraction environnant, lorsque le nanocristal de diamant est déposé sur une lame de verre. Pour confirmer ce résultat, on pourrait déposer les nanocristaux de diamant sur d'autres substrats ayant des indices différents, par exemple un substrat de TiO_2 (indice $n_{TiO_2} = 2.75$). Si notre hypothèse est vérifiée, alors on devrait observer une durée de vie de ≈ 15 ns. Cette voie n'a pas été explorée plus en détail dans le cadre de ce travail.

Si l'on admet que nos résultats sont en bon accord avec la formule 3.33, sans correction supplémentaire de champ local, notre expérience se distingue d'autres réalisations [72, 73, 74, 75, 76, 77] pour lesquelles le champ local est un paramètre important. Notre expérience met ainsi en évidence un effet d'électro-dynamique "sans cavité", très simple mais quantitativement très significatif, dans lequel la durée de vie est modifiée d'un facteur supérieur à 2.

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons isolé optiquement, puis étudié un centre NV unique dans le diamant massif ainsi que dans des nanocristaux de diamant. L'unicité du centre NV est déduite de la fonction d'autocorrélation d'intensité. L'étude approfondie de cette fonction (en fonction de la puissance d'excitation) a mis en évidence l'existence d'un état métastable responsable d'une diminution du taux de fluorescence. Néanmoins le passage sur ce niveau ne gêne pas la réalisation d'une source impulsionnelle efficace, puisque le temps de piègeage reste faible.

La méthode originale pour déduire les paramètres photophysiques k_{ij} permet aussi de remonter à l'efficacité de collection du montage sans aucune hypothèse supplémentaire.

Les centres NV dans le diamant massif ne nous ont pas donné entière satisfaction dans le but de mettre en place une source de photons uniques. Nous nous sommes alors tournés vers les centres NV dans des nanocristaux de diamant. Nous avons observé une diminution du signal de fond, et une augmentation de l'efficacité de collection. Cette étude a mis en évidence un effet d'électrodynamique

quantique simple : la durée de vie d'un émetteur unique n'est pas la même dans le diamant massif ou dans un nanocristal de diamant. En fait, si l'on admet que la correction du champ local est la même dans le diamant massif et dans les nanocristaux, notre système est insensible au champ local, à la différence de toutes les expériences réalisées auparavant. Notre expérience ne mesure donc que l'effet dû à l'indice de réfraction du milieu diélectrique, ce qui (à notre connaissance) n'avait jamais été observé.

Avant de passer en excitation impulsionnelle pour réaliser une source de photons uniques pour la cryptographie quantique, nous allons décrire brièvement deux études complémentaires réalisées dans le but d'améliorer l'efficacité d'émission du centre NV.

Chapitre 4

Expériences complémentaires

Les résultats obtenus dans le chapitre précédent ont confirmé l'intérêt des centres NV pour réaliser une source de photons uniques. Mais divers problèmes subsistent : tout d'abord, le spectre d'émission du centre est très large, ce qui complique la réalisation d'un modulateur de polarisation efficace. De plus, un spectre plus étroit pourrait faciliter le couplage du centre NV avec une microcavité, ce qui permettrait en principe de récolter plus de photons. Pour réduire la largeur du spectre, nous avons envisagé de refroidir le centre NV. Par ailleurs, l'excitation à 532 nm peut transférer le centre dans un état métastable. Pour éviter cet effet, on peut envisager d'exciter le centre à une autre longueur d'onde (par exemple à résonance), ou bien avec deux longueurs d'ondes différentes pour créer un effet de "repompage".

Bien que finalement ces expériences n'aient pas donné de résultats satisfaisants, elles apportent des informations supplémentaires sur la spectroscopie du centre NV, et sont donc décrites dans ce chapitre. Dans une première partie nous décrirons les expériences effectuées à froid, puis les expériences sous excitation à résonance.

4.1 Expériences à basse température

La largeur spectrale d'un centre NV est due au couplage avec les phonons lors de la désexcitation radiative. Comme le montre la figure 4.1 [36], pour émettre un photon, le centre NV se désexcite depuis l'état vibronique fondamental de l'état excité, vers un état vibronique excité de l'état fondamental.

En diminuant la température, les répliques de phonons devraient s'atténuer et la raie à zéro phonon (ZPL, ou zero phonon line) devrait être favorisée. Si on parvient à concentrer toute (ou une grande partie) de l'émission dans la ZPL, on peut envisager d'obtenir un couplage efficace avec une cavité.

Les expériences se sont déroulées dans le laboratoire de V. Sandoghdar à l'Université de Constance. J'ai travaillé en collaboration avec O. Benson et T. Aichele qui est le doctorant sur cette expérience.

4.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est très similaire à celui décrit dans la section 2.3. Le laser d'excitation est un laser Coherent modèle Verdi pouvant délivrer une puissance de 5W. Comme pour toute expérience à froid, on ne peut pas utiliser un objectif de grande ouverture numérique à cause de la grande distance de travail entre l'objectif et l'échantillon. On a utilisé un objectif Zeiss ayant une ouverture $NA = 0.5$ et un grandissement $\times 40$. Le trou de filtrage a un diamètre de 100μm. Le montage ne

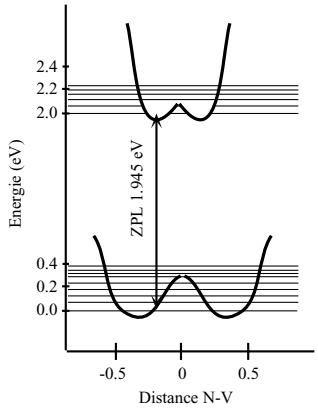


Figure 4.1: *Niveaux électroniques et vibroniques d'un centre NV. Il a été observé que l'atome d'azote et la lacune changent de place dans la maille cristalline par effet tunnel[36]. Ceci correspond aux deux minimas qui apparaissent sur la figure.*

dispose pas de dichroïque, mais seulement d'une lame séparatrice $R = 0.8$, $T = 0.2$ (le faisceau d'excitation est transmis par la lame). Le balayage en XY est assuré par deux platines de translation, et le balayage fin par une cale piézo-électrique. La course totale de la cale est de 2μm sur chaque axe. L'objectif n'est pas monté sur une piézo-électrique.

Malheureusement le dispositif expérimental n'était pas encore au point, et il n'y avait pas de balayage contrôlé par ordinateur. Pour obtenir plus facilement un signal, on a choisi de travailler avec le diamant massif irradié à une dose de 10^{14} e^-/cm^2. Cet échantillon est trop irradié pour pouvoir résoudre un centre NV unique, mais suffisamment peu irradié pour que la lumière de fluorescence de la ZPL ne soit pas absorbée par les centres NV hors du plan d'observation.

4.1.1.1 Cryostat

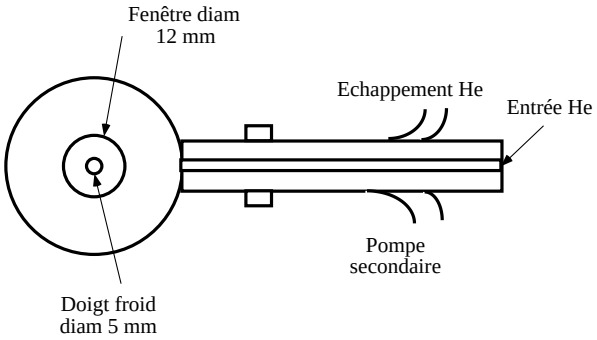


Figure 4.2: *Diagramme schématique du cryostat*

Nous avons utilisé un cryostat de la compagnie *Cryovac*. Il peut fonctionner avec de l'azote liquide ou de l'hélium liquide. L'échantillon repose sur un "doigt froid". Le contact thermique est fait par le biais d'une graisse à vide. L'isolement entre le doigt et l'environnement est assuré par un vide secondaire de $4 * 10^{-6}$ mbar. La température est réglée en ajustant le flux d'hélium dans le cryostat. La sortie He du cryostat est reliée à un système de récupération en légère sous-pression. En réglant le débit de la bouteille d'hélium, on peut régler la température souhaitée. Le réglage fin est réalisé par une résistance chauffante.

Nous disposons d'un spectromètre Spectra 500i Pro composé d'un réseau et d'une caméra CCD refroidie par de l'azote liquide. La résolution spectrale est de $0.12nm$

4.1.2 Spectres des centres NV

Sur la figure 4.3 nous avons représenté l'évolution du spectre d'émission d'un centre NV en fonction de la température. La puissance d'excitation est de 28 mW à l'entrée de l'objectif.

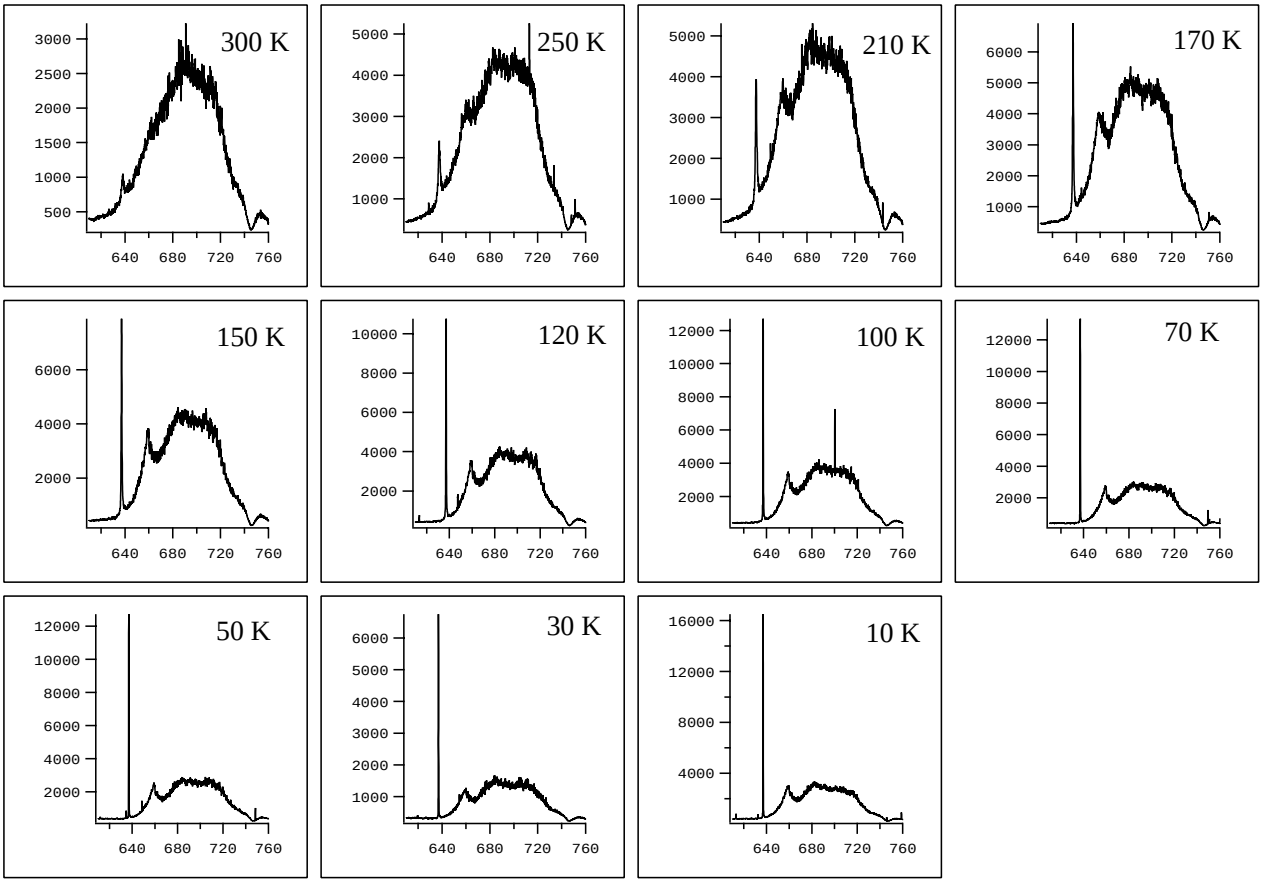


Figure 4.3: *Evolution du spectre d'un centre NV en fonction de la température. Les unités de l'axe vertical sont arbitraires, et varient d'une courbe à l'autre.*

La première courbe est enregistrée à température ambiante et la dernière à 10 K. On remarque qu'au fur et à mesure que la température baisse, la ZPL devient de plus en plus prononcée. On observe trois répliques de phonon. Pour extraire les informations qui nous intéressent, nous avons ajusté chaque graphique avec 4 gaussiennes, comme le montre la figure 4.4. Une gaussienne correspond à la ZPL, et les trois autres aux répliques de phonons.

4.1.3 Evolution de la ZPL, facteur de Debye

On s'intéresse à l'évolution de la ZPL en fonction de la température. On veut en particulier connaître le taux de fluorescence émis dans la ZPL à basse température, ainsi que sa largeur. Idéalement, on voudrait obtenir un taux d'émission dans la ZPL supérieur 50% à une température accessible avec un élément Peltier, soit $\approx -40^{\mathrm{o}}$C.

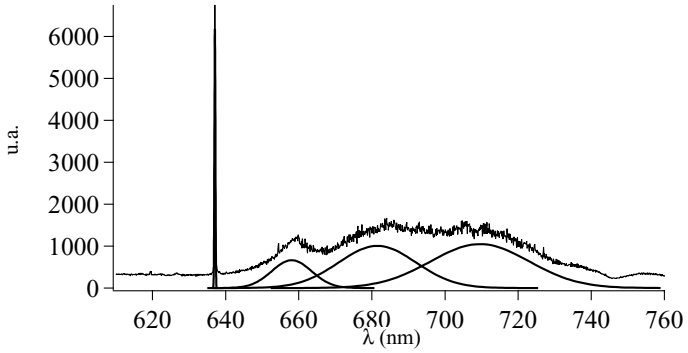


Figure 4.4: *Ajustement d'un spectre de centre NV à* $30K$ *par une raie à zero phonon et* 3 *répliques de phonons.*

La figure 4.5 représente la largeur de la ZPL en fonction de la température du cristal de diamant. On remarque une réduction de la largeur jusqu'à un minimum de 0.3 nm.

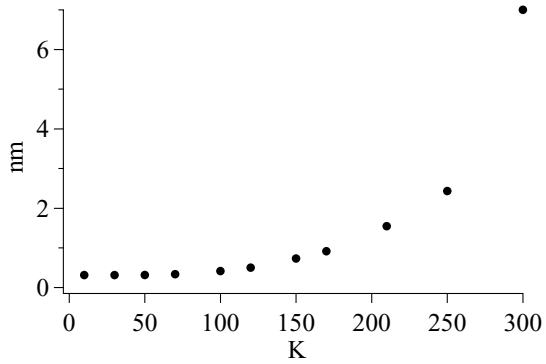


Figure 4.5: *Largeur de la ZPL en fonction de la température*

La réduction de la largeur de la ZPL est certes un résultat encourageant, mais le paramètre important est en fait le facteur de Debye-Waller, défini par :

$$\alpha_{DW} = \frac{I_{ZPL}}{I_{ZPL} + I_{Phonons}} \tag{4.1}$$

où I_{ZPL} et $I_{Phonons}$ sont les intensités lumineuses émises dans la ZPL et dans les répliques de phonons respectivement. Sur la figure 4.6 nous avons tracé le facteur α_{DW} en fonction de la température.

Le facteur de Debye-Waller vaux au mieux $\alpha_{DW} = 0.03$ pour une température de 10K. Ceci implique que seulement 3% des photons émis proviennent d'une transition dans la ZPL, ce qui correspond à une augmentation d'un facteur 3 par rapport aux taux d'émission à température ambiante.

Introduisons le facteur de Huang-Rhys (S) qui décrit le déplacement de l'état excité par rapport à l'état fondamental, comme le montre la figure 4.1. Plus ce facteur est grand, plus le déplacement est important et donc plus le couplage avec les phonons sera important. On peut alors écrire la

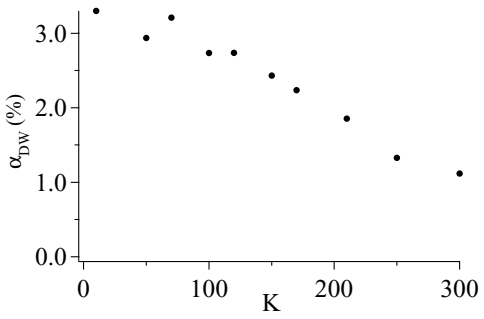


Figure 4.6: *Facteur de Debye-Waller (en pourcentage) en fonction de la température*

probabilité (P_{n0}) d'émission de l'état vibrationnel $n = 0$ de l'état excité, vers le niveau vibrationel n de l'état fondamental à basse température [81]:

$$P_{n0} = \frac{S^n e^{-S}}{n!} \tag{4.2}$$

D'après nos expériences nous avons $P_{00} = \alpha_{DW} = 0.03$ et $P_{10} = .1$ ce qui implique que $S \approx 3.4$. Cette valeur est proche de la valeur donnée dans la littérature $S = 3.65$[34, 81].

Remarque : La faible valeur observée du facteur α_{DW} peut avoir une autre cause. Si la densité de centre NV est trop importante, alors la lumière émise dans la ZPL peut être ré-absorbée très efficacement par un autre centre, puisque le photon est en résonance avec la transition du centre NV. Néanmoins, dans notre cas, on estime la densité de centres à 10^{20} centres / cm^3 ce qui reste encore faible. De plus si la lumière émise était ré-absorbée, alors le nombre total de photons collectés devrait baisser puisque nous ne collectons que la lumière provenant du plan focal objet de l'objectif. Nous n'avons pas observé de diminution du nombre de photons collecté.

4.1.4 Conclusion

Les mesures à froid que nous avons effectuées n'ont pas donné de résultats allant dans le sens souhaité. Certes la largeur de la ZPL diminue jusqu'à une largeur de 0.3 nm à basse température, mais le taux de fluorescence dans la ZPL reste faible : seulement 3% des photons y sont émis. Bien que la ZPL forme un pic bien isolé à basse température, l'essentiel de la lumière est émise dans le "piédestal" dû aux résidus de répliques de phonons.

4.2 Excitation à 637 nm

L'étude photophysique (chapitre 3) d'un centre NV unique sous excitation continue a mis en évidence l'existence d'un état métastable capable de piéger le centre NV. D'après le modèle théorique que nous avons utilisé, le taux de fluorescence émis par le centre NV est réduit d'un facteur 5.8. Notre étude permet de montrer que même sous excitation impulsionnelle, on observera une réduction de l'efficacité de production de photons uniques à cause de ce même état métastable. Nous avons estimé que l'on perdra environ un facteur 1.5 à 2.

Dans la modélisation du système à trois niveaux (section 3.2.1), on ne fait aucune supposition sur la nature du niveau métastable. Par contre l'étude photophysique montre que le pompage vers l'état

métastable dépend de l'intensité d'excitation. On peut conclure que le passage vers l'état piège ainsi que le dépompage, pourrait s'effectuer via un quatrième niveau relais.

On peut alors envisager d'exciter le centre NV à résonance (637 nm), pour éviter le peuplement de l'état métastable. En effet si le niveau relais se trouve suffisamment éloigné en énergie, alors la probabilité de pomper le niveau métastable devrait être nulle. De plus, dans le cas ou les résultats seraient probants, il deviendrait très facile de faire une source compacte de photons uniques, puisqu'il existe des diodes laser à 637 nm, que l'on peut faire fonctionner en régime continu ou impulsionnel.

4.2.1 Modifications au montage expérimental

L'excitation à 637 nm est obtenue grâce à une diode laser. On a travaillé avec deux types de diodes : une Sanyo (DL-4038-26) et une Hitachi (HL6233MG) délivrant des puissances de 20 mW et 30 mW respectivement. Ceci est largement suffisant pour notre expérience. En effet, à résonance, la puissance de saturation devrait être plus faible qu'à 532 nm. La longueur d'onde de la diode laser est ajustée en contrôlant sa température. Pour isoler la lumière d'excitation de la lumière de fluorescence, on place un filtre passe-haut (50% à 645 nm) avant le trou du microscope confocal.

L'émission d'une diode laser ne se fait pas sur une seule longueur d'onde. Il y a toujours un piédestal qui s'étale sur quelques nanomètres. Même si l'intensité du piédestal est très faible, elle est suffisamment importante pour être détectée et éblouir les photodiodes à avalanche. On effectue donc un filtrage spectral de la diode laser avec un réseau et un trou de filtrage spatial (voir figure 4.7).

Nous avons remplacé la lame dichroïque utilisée dans la section 2.3 par une lame métallique 50/50 puisque la lame dichroïque ne réfléchit pas le laser à 637 nm. Le désavantage est que nous ne collectons plus que la moitié des photons émis par le centre NV.

Finalement, pour des raisons techniques[1] nous avons remplacé le laser d'excitation vert à 532 nm par un laser Ar^+ à 514 nm. Ceci n'a aucune influence sur le centre NV, mais augmente légèrement le bruit de fond. La polarisation des deux faisceaux d'excitation est identique, linéaire.

4.2.1.1 Mélange des deux faisceaux laser

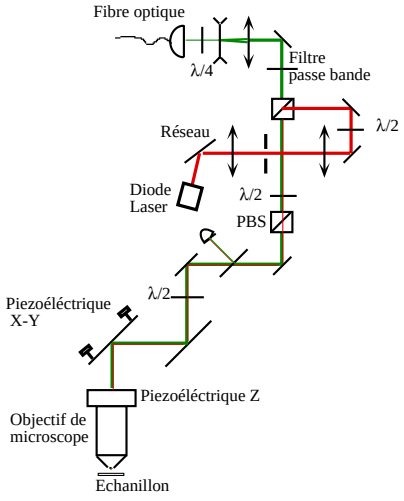


Figure 4.7: *Montage expérimental pour l'excitation avec deux lasers.*

[1] Le laser Yag à 532 nm est tombé en panne

Le mélange des deux faisceaux doit être fait de façon précise. L'alignement est assez facile à obtenir, mais les divergences doivent aussi être exactement les mêmes, sinon les points de focalisation des excitations rouge et verte seront différents. Il faut aussi tenir compte des légères aberrations chromatiques introduites par l'objectif de microscope. Pour superposer exactement les deux faisceaux laser, nous remplaçons l'échantillon par un miroir métallique. Puis on effectue un balayage de l'objectif suivant l'axe Z en mesurant avec les PDA le nombre de photons réfléchis par le miroir. Il faut faire attention d'atténuer le plus possible les faisceaux laser car nous avons ôté les filtres interférentiels et une puissance trop importante peut endommager les PDA. Sur la figure 4.8 nous avons représenté des balayages pour chacune des longueurs d'onde, enregistrés séparément ou simultanément. Sur la figure de gauche, la divergence des deux faisceaux n'est pas la même, et les points de focalisation suivant l'axe Z sont différents.

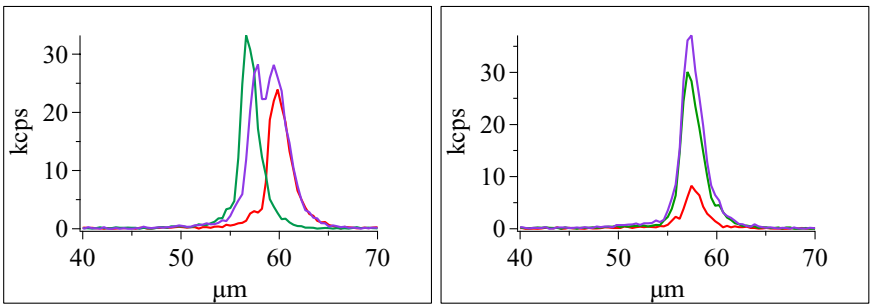


Figure 4.8: *Balayages suivant l'axe Z pour chacune des longueurs d'onde d'excitation, enregistrés séparément ou simultanément. Sur la figure de gauche, on a représenté le cas où les divergences des deux faisceaux sont différentes, sur la figure de droite le réglage qu'il faut obtenir.*

4.2.2 Excitation monochromatique

4.2.2.1 Diamant massif

Sous excitation rouge (637 nm) nous n'observons aucun centre NV dans le diamant massif. De plus les images obtenues par balayage ne présentent aucune structure. En étudiant le spectre de fluorescence, on remarque un pic à 694 nm quel que soit l'endroit excité dans le cristal.

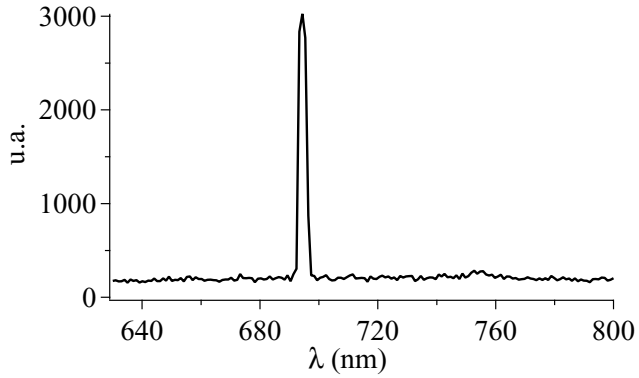


Figure 4.9: *Spectre de la lumière de fluorescence provenant du diamant massif sous excitation à* 637 *nm*

Le déplacement Raman du diamant est de ≈ 1335 cm^{-1}[34]. Pour une excitation à 637 nm, on

devrait observer une raie à 696 nm. On peut raisonnablement confondre ce résultat avec le résultat expérimental, à cause de la résolution médiocre de notre monochromateur (2 nm).

On ne peut donc pas observer des centres NV uniques dans le diamant massif sous excitation rouge, car on est ébloui par la raie Raman, qui est bien plus lumineuse.

4.2.2.2 Nanocristaux de diamant

Pour éviter la raie Raman, on étudiera les centres NV dans les nanocristaux de diamant. Le volume de chaque nanocristal est suffisamment faible pour que la diffusion Raman soit faible.

Dans un premier temps, nous avons tracé la courbe de saturation pour chaque excitation pour un nanocristal contenant plusieurs centres NV. Nous avons utilisé de la poudre de diamant irradiée et recuite, mais sans aucune sélection en taille. La poudre est dispersée grossièrement sur une lame de microscope. Le tableau ci-dessous résume les résultats.

λ (nm)	Nbre de photons à saturation N_s	Intensitée de saturation I_s
514	9.5×10^6 photons s^{-1}	3.5 mW
637	2.4×10^4 photons s^{-1}	0.2 mW

Comme prévu l'intensité de saturation est plus faible sous excitation résonante. On mesure une intensité de saturation 17.5 fois plus faible que sous excitation à 514 nm. Par contre, le taux de fluorescence à saturation est bien plus faible sous excitation à 637 nm comparé à 514 nm. Le rapport $\theta = N_{514}/N_{637}$ vaut $\theta = 395$, ce qui peut sembler étonnant, et suggère que l'excitation à 637 nm pomperait encore plus efficacement le centre NV dans l'état métastable que l'excitation à 514 nm.

4.2.3 Excitation bi-chromatique

Pour essayer de dé-pomper l'état métastable [36] nous allons mélanger les deux longueurs d'ondes. Nous choisissons une puissance de vert plus faible que la puissance de saturation pour éviter d'exciter directement la transition avec le laser vert. On choisit une puissance d'excitation dans le rouge bien supérieure à la puissance de saturation.

P_{637} (mW)	P_{514} (mW)	N_{637} ph/s	N_{514} ph/s	$N_{637+514}$ ph/s	N_{637}+N_{514} ph/s
0.69	0	19k	0	19k	19k
0.69	0.007	19k	19k	130k	38k
0.69	0.014	19k	37k	180k	56k
0.69	0.028	19k	70k	249k	89k

Le tableau ci-dessus résume les résultats obtenus en excitation bi-chromatique, comparé à l'excitation monochromatique. Il est étonnant de remarquer que le taux de fluorescence sous excitation bi-chromatique $N_{637+514}$ est supérieure d'un facteur 3 par rapport à la somme des excitations individuelles (N_{637}+N_{514}). Ceci indique que l'excitation verte, même de très faible puissance, peut dépomper très efficacement l'état piège.

4.2.3.1 Centre NV unique

Pour s'assurer que le phénomène observé n'est pas un effet collectif, nous avons étudié l'effet de l'excitation bi-chromatique sur un centre NV unique à l'intérieur d'un nanocristal de diamant. Il est à noter que le niveau de fluorescence sous excitation rouge d'un centre NV unique est noyé dans le bruit ambiant. Nous procédons à la recherche de centres NV en excitation verte. Le but est de

mesurer le gain en taux de fluorescence à saturation en excitation bi-chromatique par rapport à une excitation verte seule.

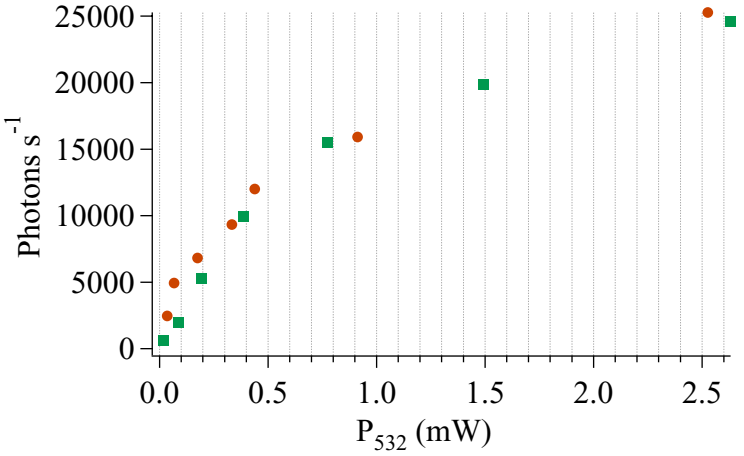


Figure 4.10: *Courbe de saturation en fonction de la puissance d'excitation de vert, pour une puissance de rouge nulle (carrés verts) et égale à* 1.9 *mW (cercles rouges).*

La figure 4.10 représente une courbe de saturation en fonction de la puissance de laser vert pour deux puissances de rouge. On note qu'à faible puissance, on observe l'effet d'addition non linéaire des deux excitations. Par contre à forte puissance de vert, les deux courbes se superposent. Le taux de fluorescence en excitation bi-chromatique ne dépasse pas le taux de fluorescence sous excitation verte seule.

4.2.4 Discussion et Conclusion

Résumons les différents phénomènes observés afin de tirer des conclusions.

L'intensité de saturation I_s^{637} est plus faible que I_s^{514}, par contre le taux de fluorescence à saturation est très réduit sous excitation rouge. Nous pouvons conclure que l'excitation à 637 nm pompe très efficacement le centre NV dans un état métastable. Les mécanismes de dépompage sont quasiment absents. Il n'est a priori pas évident que cet état métastable soit le même que celui mis en évidence dans la section 3. D'autres expériences à basse température [82] ont montré l'existence d'un hole burning persistant en excitant à 637nm. Le faible taux de fluorescence en excitation rouge peut aussi être attribué à un pompage optique des sous-niveaux de l'état fondamental [83, 84, 21, 85].

Nous avons mesuré le taux de fluorescence en excitation monochromatique et bi-chromatique. On observe que le taux de fluorescence bi-chromatique $N_{637+514}$ est supérieur (d'environ un facteur 3) à la somme des excitations individuelles (N_{637}+N_{514}). Ceci est valable pour des faibles puissances de vert et l'excitation rouge saturée. Dans le cas où l'intensité de l'excitation verte devient importante (de l'ordre de l'intensité de saturation), alors on n'observe plus cet effet et $N_{637+514}$=N_{637}+N_{514}≈ N_{514}. L'excitation rouge n'a donc plus aucune influence sur le taux de comptage.

En conclusion, nous avons étudié l'effet de l'excitation bi-chromatique sur un centre NV unique et nous avons observé une addition non-linéaire des deux taux de fluorescence. Par contre, ce taux reste toujours inférieur au taux de saturation que l'on peut avoir avec une seule excitation à 514 nm ou 532 nm. Dans le cadre d'une source à photons uniques, l'excitation bi-chromatique n'améliore pas le nombre maximum de photons collectés, et elle a donc été abandonnée.

Chapitre 5

Source de photons uniques polarisés

Dans ce chapitre nous allons détailler la source laser impulsionnelle que nous avons réalisée pour exciter les centres NV. Puis nous présenterons les résultats obtenus sur des centres NV sous excitation impulsionnelle. Enfin nous verrons comment nous avons réussi à augmenter l'efficacité de collection en déposant les nanocristaux de diamant sur un miroir diélectrique.

5.1 Laser impulsionnel

Le laser impulsionnel fait partie intégrante de la source de photons uniques. Le centre NV peut être vu comme un transformateur : pour chaque impulsion du laser d'excitation, il délivre un et un seul photon. Mais pour que la conversion soit efficace, il faut adapter la durée, le taux de répétition et l'amplitude de l'impulsion à notre dipôle. En s'appuyant sur le chapitre 1 et les résultats du chapitre 3, nous pouvons conclure que le laser impulsionnel doit satisfaire les conditions suivantes :

- Durée de l'impulsion $\delta T \approx 1$ ns
- Taux de répétition $T \leq 10MHz$
- Puissance crête de l'impulsion ≈ 100 mW
- Longueur d'onde 532 nm.

Ces conditions très particulières ne sont réunies dans aucun laser commercial. Nous avons donc dû monter notre propre chaîne laser [86], suivant un principe qui nous a été suggéré par Patrick Georges du groupe ELSA de l'Institut d'Optique. Le montage expérimental est décrit dans la figure 5.1.

5.1.1 Laser continu et modulateur

La base de notre chaîne impulsionnelle est un laser Nd-YAG continu monomode de longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm et de puissance 100 mW de la compagnie *Crystal Laser*. Le laser est polarisé linéairement. Il est suivi d'un isolateur optique car des retours, même de faible intensité, perturbent le laser et de fortes fluctuations d'intensité peuvent apparaître. Les retours proviennent essentiellement du modulateur intégré, le couplage entre la fibre et le modulateur étant imparfait.

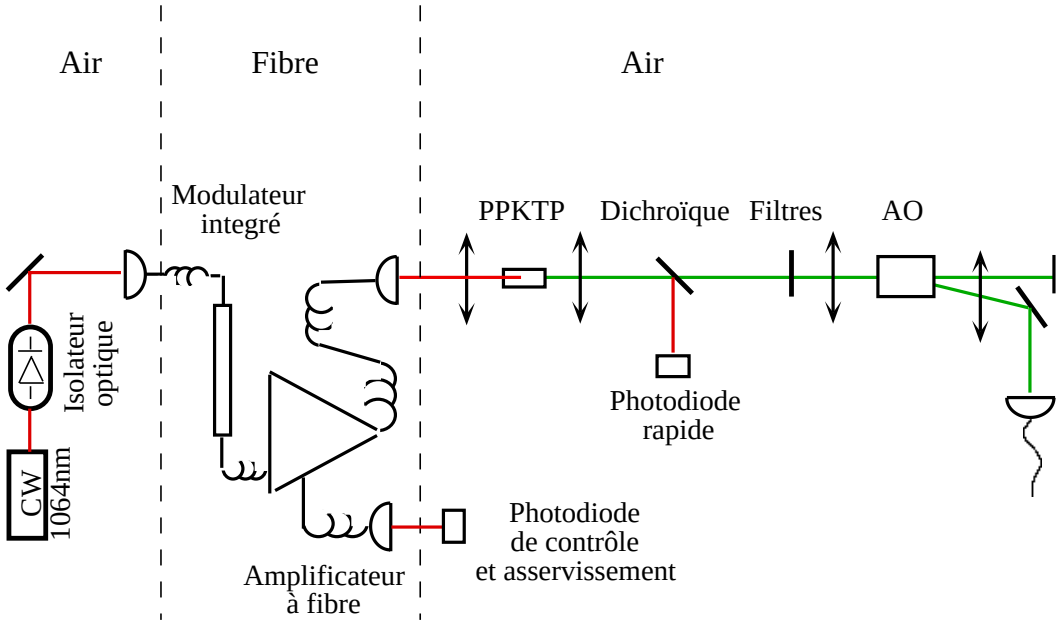


Figure 5.1: *Montage du laser impulsionnel, qui comprend un laser continu, un modulateur rapide, un amplificateur optique, et un cristal de doublage.*

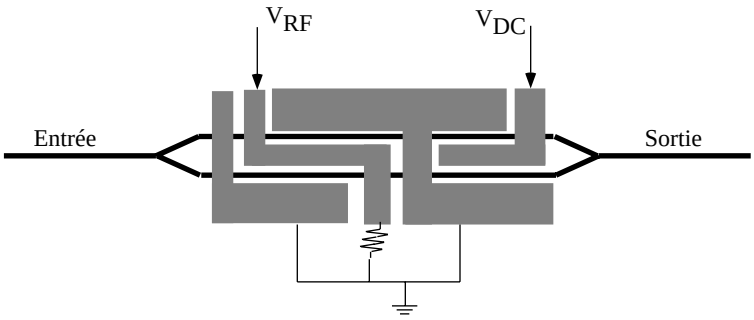


Figure 5.2: *Modulateur d'intensité intégré $LiNbO_3$*

5.1.1.1 Le modulateur intégré

Afin de découper des "tranches" dans le laser continu, on utilise un modulateur intégré fibré $LiNbO_3$ *Alenia* (fig. 5.2). C'est un modulateur d'intensité à base d'un interféromètre de Mach-Zehnder, dont la différence de marche est fonction de la tension de commande. Il faut une différence de tension de $V_\pi \approx 4$ V pour basculer de l'extinction à la transmission totale. A tension nulle la différence de marche n'est pas déterminée, et dépend en particulier de la température. Les caractéristiques du modulateur sont les suivantes :

- Bande passante : 3 GHz
- Taux d'extinction : 40 dB
- Puissance maximale : 50 mW
- Pertes d'insertion : ≈ 6 dB

- Lumière rétro-réfléchie : typiquement -50 dB (nous observons plutôt -30 dB).

Le modulateur possède deux entrées pour les signaux électriques. Sur la première, de faible bande passante, nous pouvons appliquer une tension continue d'offset. Celle-ci permet de régler la transmission du modulateur, et elle sera ajustée pour avoir une transmission nulle. La tension de modulation est appliquée à la deuxième entrée, qui possède une grande bande passante (3 GHz). Les impulsions de commande proviennent d'un générateur Avtec AVM-1-C, synchronisé sur une horloge externe de fréquence $f = 16$ MHz. La durée de l'impulsion électrique peut varier de $\delta T = 0.8$ ns à $\delta T = 4$ ns. Pour des raisons que l'on expliquera par la suite, le produit $f \cdot \delta T$ doit rester constant.

A l'entrée du modulateur, la lumière doit être polarisée linéairement suivant un axe imposé par le guide (la polarisation perpendiculaire à cet axe ne se propage pas).

5.1.1.2 Offset et asservissement

La tension d'offset permet de régler le modulateur afin d'avoir une extinction totale de l'intensité lorsqu'aucune tension RF n'est appliquée (modulateur au repos). La valeur de la tension d'offset dépend de la température. De plus, pour une valeur fixe de cette tension, des charges électriques se déposent sur le cristal électro-optique, ce qui a comme conséquence de faire dériver la phase de l'interféromètre. Ainsi la puissance de sortie n'est pas stable pour une tension d'offset donnée. Cette dérive est assez importante, et augmente avec la tension appliquée: elle vaut environ $\approx 5\%$ en 1 min pour une tension de $\approx 1V$, et $\approx 10\%$ en 30 s pour une tension de $\approx 10V$. Si on applique une tension de 0V lorsque la tension est élevée, le modulateur se décharge et revient à sa position d'équilibre.

Pour maintenir le modulateur sur un minimum d'intensité, nous avons mis en place un asservissement basé sur une détection synchrone (fig. figure 5.3). On mélange la tension continue d'offset avec un signal carré de fréquence 10 kHz. Cette modulation est détectée par la photodiode de contrôle (voir figure 5.1).

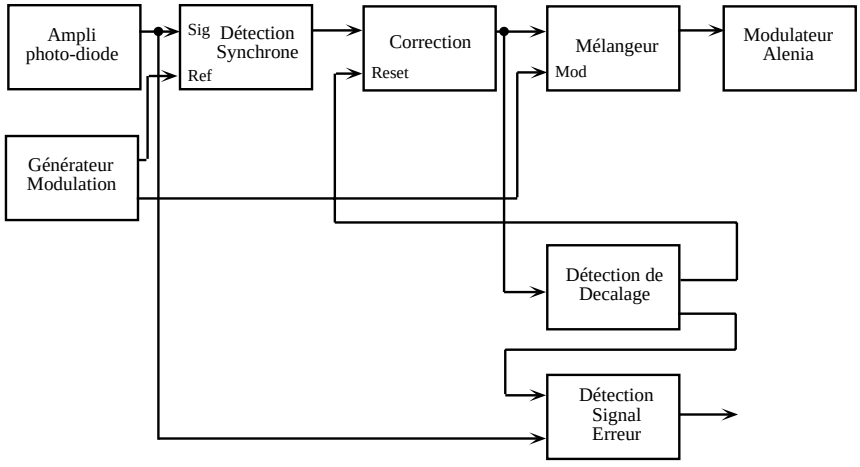


Figure 5.3: *Schéma de principe de l'asservissement du modulateur intégré Alenia*

La tension maximale sur l'entrée DC ne doit pas dépasser 40 V. Nous avons donc placé un seuil pour la tension d'offset à 8 V. Lorsque cette valeur est dépassée, l'asservissement décroche, et se place sur une autre frange "noire" proche de 0 V. Pendant le temps de transition, l'expérience doit être interrompue, car le laser d'excitation n'est plus impulsionnel. Le module "Détection signal Erreur" mesure le signal d'erreur pendant la transition. Lorsque ce signal est inférieur à une valeur fixée par avance, l'expérience est relancée.

5.1.2 Amplificateur à fibre

Le signal impulsionnel créé par le modulateur doit ensuite être amplifié pour avoir un doublage en fréquence efficace. Nous utilisons un amplificateur commercial à fibre dopée Ytterbium (*Keopsys* modèle OI-BT-YFA-1064-30-A-No-FA). Il est composé de deux étages, un étage de pré-amplification et un étage d'amplification appelé Booster. L'étage d'amplification comporte deux diodes de pompe. On peut contrôler indépendamment leur courant. Il est néanmoins conseillé d'avoir environ le même courant dans les deux diodes. Des isolateurs optiques sont placés à l'entrée de l'amplificateur, entre le pré-amplificateur et le "booster" ainsi qu'à la sortie. En effet les retours optiques peuvent endommager l'amplificateur.

La puissance de sortie peut atteindre 30 dBm[1] pour un signal d'entrée continu entre -10 dBm et 5 dBm. La polarisation du signal amplifié peut être réglée indépendamment de la polarisation de l'entrée. La longueur d'onde du signal amplifié est la même que le signal d'entrée, soit $\lambda = 1064$ nm dans notre montage.

Il faut prendre quelques précautions quant à l'utilisation de l'amplificateur. Les diodes de pompe créent une inversion de population du milieu à gain, qui est une fibre optique dopée aux ions Ytterbium. La longueur de la fibre optique n'est pas communiquée par le constructeur. Lorsque le signal traverse la fibre, il est amplifié par émission stimulée. Dans le cas où il n'y a pas de signal en entrée, l'émission spontanée du milieu à gain peut s'auto-amplifier et produire une impulsion de lumière très intense. On obtiendrait ainsi en sortie de l'amplificateur des puissances crêtes de plusieurs kW, ce qui peut entrainer la destruction des fibres optiques, ou des isolateurs optiques de l'amplificateur. Pour éviter cet effet "d'auto-déclenchement", la puissance d'entrée de l'amplificateur ne doit jamais être inférieure à -10 dBm[2]. Or compte tenu des différentes pertes[3] entre le laser CW et l'entrée de l'amplificateur, on n'obtient que -7 dBm pour une durée d'impulsion de 0.8 ns et un taux de répétition de 16 MHz. Ceci ne laisse pas beaucoup de marge de manœuvre pour choisir indépendamment le taux de répétition et la durée de l'impulsion.

5.1.3 Doublage de fréquence

Pour la génération de second harmonique [87], on focalise le faisceau impulsionnel amplifié dans un cristal doubleur de PPKTP (Periodically Poled $KTiOPO_4$) de type I. Ce cristal est formé de domaines successifs de KTP orientés dans des directions opposées par application préalable d'un champ électrique. La condition d'accord de phase n'est pas dictée par l'orientation du cristal comme c'est le cas pour un milieu non-linéaire classique, mais par la taille des domaines successifs. Le cristal de PPKTP que nous avons utilisé provient de *Raicol Crystals*. Il mesure 9.5 mm de longueur, 1 mm de hauteur, et 2 mm de largeur. Il offre une bonne efficacité de doublage (30%) pour des densités d'énergies moyennes entre 100 kW/cm^2 et 2 MW/cm^2. Au delà de cette puissance, le cristal peut être endommagé. Les domaines successifs de PPKTP sont calculés en fonction de l'indice de réfraction, qui dépend de la polarisation à cause de la biréfringence du cristal. L'accord de phase n'est donc obtenu que pour une polarisation donnée.

La figure 5.4 montre que le maximum de doublage a lieu pour une température proche de 27^oC. Le cristal est placé à l'intérieur d'un four asservi en température. Une stabilité de 0.1^oC est largement suffisante (fig. 5.4) pour ne pas avoir de fluctuations importantes dans l'intensité de second harmonique. On transforme ainsi les impulsions amplifiées à 1064 nm en impulsions à 532 nm, un

[1] S(dBm)=$10\log_{10}$(P/1mW), et 30 dBm correspond donc à 1W

[2] Donnée constructeur. Cette valeur peut varier d'un amplificateur à un autre

[3] Les pertes proviennent de l'isolateur optique (T = 80%), du couplage dans le modulateur optique (-6 dB) , et l'interconnexion entre le modulateur et l'amplificateur à fibre (-2 dB)

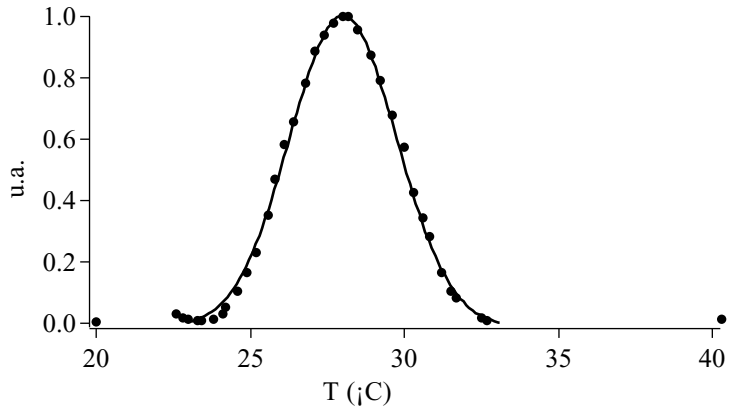


Figure 5.4: *Efficacité du doublage en fonction de la température.*

peu plus courtes que les impulsions pompes puisque la génération de second harmonique est un phénomène quadratique. Une lame dichroïque ainsi que des filtres passe-bas séparent le signal à $\lambda = 1064$ nm du signal à $\lambda = 532$ nm.

5.1.4 Modulateur Acousto-Optique

A cause des raisons techniques énumérées ci-dessus, nous avons choisi une fréquence de base de modulation de la lumière de 16 MHz. Mais d'après les conditions établies dans le chapitre 1, ainsi que des contraintes techniques liées au montage de cryptographie (voir chapitre 6), la fréquence d'excitation du centre NV doit plutôt être de 5 MHz.

Un modulateur acousto-optique permet de choisir une impulsion parmi N et ainsi de diviser le taux de répétition de la source laser. L'électronique de contrôle de la chaîne laser est composée d'un circuit programmable sur une puce FPGA. Elle permet, entre autres, de synchroniser l'application de l'onde acoustique avec le passage d'une impulsion optique. C'est le même circuit programmable qui est utilisé pour l'expérience de cryptographie et ce module de synchronisation sera donc décrit au chapitre 6. La théorie des opérations est décrite dans l'annexe A.

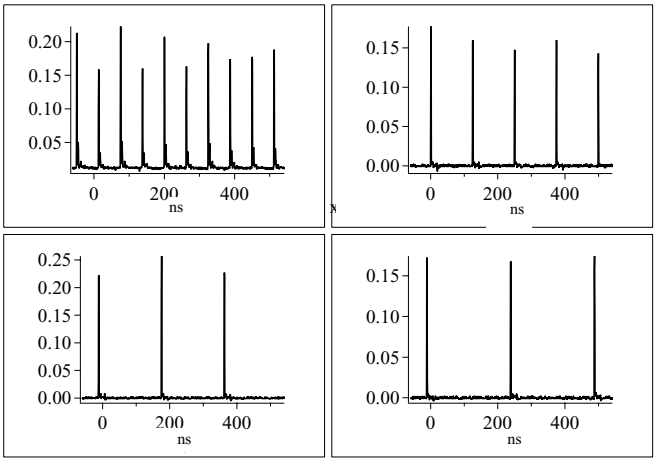


Figure 5.5: *Signal issu des photo-diodes de contrôle. La fréquence de base (*16 *MHz) est divisée par* 2*,* 3 *et* 4*. L'axe vertical est en unités arbitraires*

L'application de l'onde acoustique n'est pas instantanée et dépend du temps de propagation dans le cristal du modulateur acousto-optique. Ainsi pour pouvoir "ouvrir" une fenêtre de courte durée et ne choisir qu'une seule impulsion, il faut que le faisceau optique ait un faible diamètre. Avec une excitation continue, nous avons mesuré un temps de basculement "off-on-off" de 50 ns (26 ns à mi-hauteur). Pour pouvoir choisir convenablement une seule impulsion parmi N la fréquence RF du modulateur ne doit pas dépasser $1/60\text{ns}^{-1} = 16.6$ MHz.

La figure 5.5 montre l'efficacité de cette méthode. Le graphique en haut à gauche représente le laser impulsionnel amplifié à 16 MHz, et les autres courbes les impulsions à des fréquences de $8, 5.3$ et 4 MHz.

5.1.5 Caractérisation de la chaîne laser

Nous allons caractériser la chaîne laser en mesurant trois facteurs importants : la puissance du second harmonique, la durée de l'impulsion, et enfin le signal résiduel entre deux impulsions successives.

La figure 5.6 montre la puissance moyenne du second harmonique (P_{532}) en fonction de la puissance en sortie de l'amplificateur à fibre (P_{1064}). Pour une puissance maximum $P_{1064} = 30$ dBm, le taux de doublage ne vaut que $\approx 1\%$, ce qui est particulièrement faible. Nous avons tracé P_{532} en fonction de P_{1064} pour des durées d'impulsion $\Delta T = 1, 2, 4$ ns. Le doublage en fréquence étant un phénomène non-linéaire d'ordre 2, on s'attend à $P_{532} \propto P_{1064}^2$. On remarque que les courbes présentent un seuil à partir duquel cette relation n'est plus valable. La puissance de seuil pour $\Delta T = 1$ ns vaut $P_{\text{seuil}}^{\Delta T=1} = 150$ mW, tandis que pour $\Delta T = 2$ ns, elle vaut $P_{\text{seuil}}^{\Delta T=1} = 300$ mW. La valeur seuil double lorsque la durée de l'impulsion est multipliée par deux. Pour des durées supérieures à $\Delta T = 4$ ns, on n'observe plus d'écart à la loi quadratique.

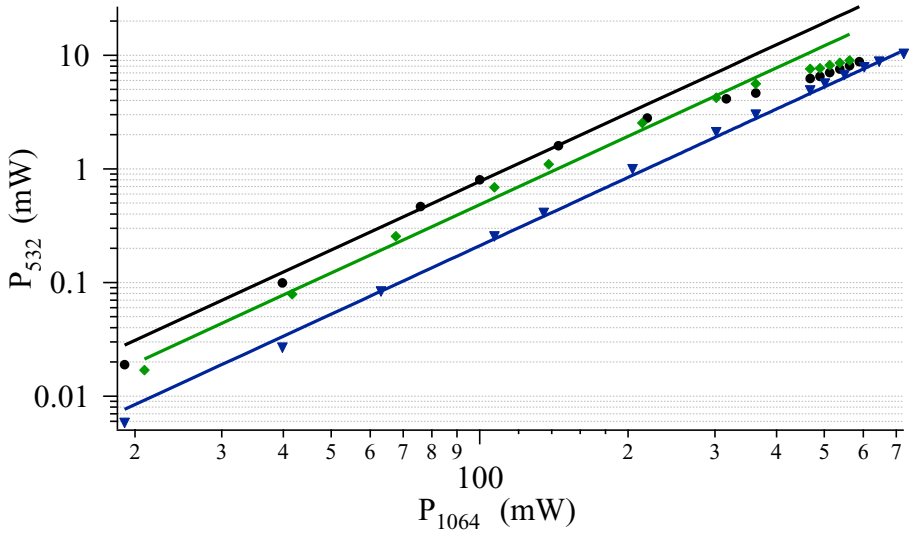


Figure 5.6: *Puissance moyenne de la fréquence doublée ($\lambda = 532nm$) en fonction de la puissance pompe ($\lambda = 1064nm$) à la sortie de l'amplificateur. Les ronds noirs correspondent à une durée de l'impulsion de $1ns$, les losanges verts $2ns$ et les triangles bleus à $4ns$. Les courbes en trait plein représentent l'ajustement quadratique des premiers points.*

L'effet de seuil observé expérimentalement est un phénomène indésirable dans notre chaine laser. La puissance moyenne de doublage reste bien au-dessous de la valeur souhaitée pour exciter les

centres, si on tient compte de toutes les pertes que l'on aura entre l'acousto-optique et l'objectif de microscope. Nous avons donc cherché à déterminer son origine. Cette investigation nous a permis de mettre en évidence deux phénomènes non-linéaires qui ont lieu dans l'amplificateur à fibre.

Le premier est un effet Raman stimulé [87]. Il se traduit par un élargissement du spectre. En analysant spectralement la lumière en sortie de l'amplificateur, nous avons remarqué un élargissement du spectre pour une puissance de sortie supérieure à la puissance seuil. Ceci a un effet direct sur la puissance de second harmonique. En effet il n'y a plus d'accord de phase dans le cristal de PPKTP pour des longueurs d'onde différentes de 1064 nm. Il est à noter que le taux de génération de second harmonique est trop faible pour avoir des effets de dépeuplement du signal vers la pompe à l'intérieur du cristal PPKTP.

Le deuxième est un effet Brillouin stimulé : une partie de la lumière est rétro réfléchie vers le milieu amplificateur et la puissance de sortie est plus faible que celle attendue. Nous avons observé que la puissance de sortie maximum était seulement de 27 dBm en régime impulsionnel, au lieu de 30 dBm en regime continu. Parallèlement, on observe que les senseurs de température des diodes de pompe de l'amplificateur, indiquent une valeur de 35^o C, voire même 40^o C pour des puissances de sortie supérieures à la puissance seuil. Cet écart par rapport à la température de fonctionnement (31^o C) indique une anomalie de fonctionnement.

Afin d'éviter les effets non-linéaires indésirables dans l'amplificateur à fibre, le constructeur a procédé au raccourcissement des fibres "passives" entre le milieu à gain et la sortie de l'amplificateur. L'effet immédiat est de repousser la puissance de seuil à 1000 mW pour des impulsions d'une durée de 1 ns. L'efficacité de doublage est maintenant de 15% soit environ $P_{\lambda=532} = 50$ mW moyen pour $P_{\lambda=1064} = 316$ mW $(25$ dBm$)$. Cette puissance moyenne est suffisante pour exciter efficacement le centre NV.

5.1.5.1 Autocorrélation du laser impulsionnel

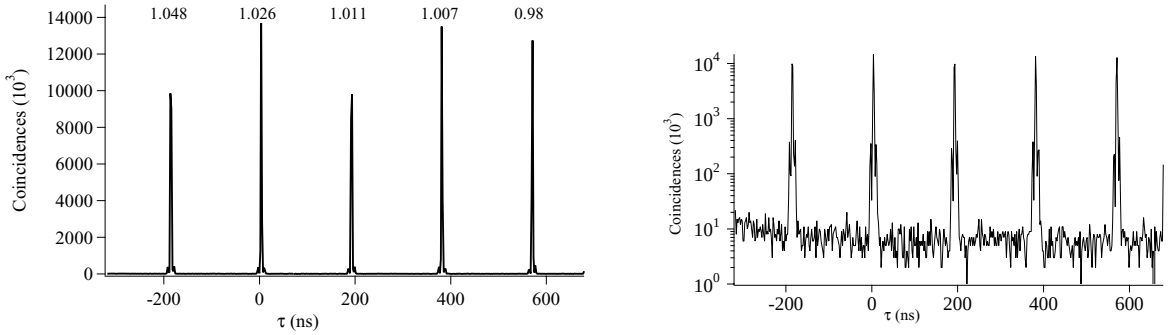


Figure 5.7: *(a) Fonction d'autocorrélation de la source laser impulsionnelle. Temps d'acquisition $T_{acq} = 42$ s, ≈ 50 kcps /PDA. La figure (b) represente la figure (a) en echelle logarithmique.*

La fonction d'autocorrélation permet une caractérisation de la source impulsionnelle bien meilleure que celle que l'on peut avoir avec une photodiode rapide. Les photodiodes de contrôle dont nous disposons sur le montage n'ont qu'une bande passante de 150 MHz, et ne résolvent pas la durée de l'impulsion, alors que l'autocorrélateur a une résolution temporelle de 300 ps.

La fonction d'autocorrélation de la source laser est représentée sur la figure 5.7. Le fréquence de répétition est de 16 MHz $/3 = 5.3$ MHz soit une période de 187.5 ns. La durée de l'impulsion est déduite de la fonction d'autocorrélation comme étant la mi-largeur à mi-hauteur. On mesure ainsi une durée d'impulsion de $\delta T = 0.8$ ns.

Les aires des pics sont identiques avec une légère décroissance vers les temps positifs, probablement à cause du fait que le nombre de coïncidences par fenêtre n'est pas faible devant le taux de photons par seconde (voir section 2.4.1). Le rapport entre l'aire d'un pic (A_{pic}) et l'aire du piedestal entre deux pics successifs ($A_n^{(n+1)}$) vaut $A = 37$ (Le rapport des amplitudes est de 10^4). Ce taux d'extinction garantit que le centre NV ne sera pas excité entre deux impulsions.

Le piédestal résiduel provient essentiellement des coïncidences enregistrées entre une impulsion laser et la lumière ambiante. Ainsi le rapport $A_{pic}/A_n^{(n+1)}$=37 n'est qu'une borne inférieure. La figure 5.7(b) montre que l'extinction des impulsions à 16 MHz est parfaite.

On peut résumer les caractéristiques principales de la chaîne laser que nous avons réalisée :

- Longueur d'onde : $\lambda = 532$ nm.
- Taux de répétition réglable = f / n avec f=16 MHz et n entier
- Durée de l'impulsion : de 0.8 à 2 ns.
- Puissance : jusqu'à 50 mW moyen, soit une efficacité de doublage de 15%
- Faible piédestal : le rapport des aires est de 37 et le rapport des amplitudes 10^3.
- Polarisation linéaire.

5.2 Centre NV sous excitation impulsionnelle

Avant d'exposer les résultats expérimentaux que nous avons obtenus sous excitation impulsionnelle, nous allons présenter brièvement la méthode utilisée pour traiter les données.

Le point sur l'efficacité de collection: La première partie des résultats présentés ci-dessous a été obtenue dans les mêmes conditions expérimentales que la partie sous excitation continue (section 3.5) : les nanocristaux de diamant sont déposés "sous" une lamelle de silice, et observés avec l'objectif à immersion. On peut ainsi comparer aisément les régimes continus et impulsionnels, mais la source est peu efficace. Les améliorations permettant d'obtenir une source de photons uniques efficace seront décrites dans la section 5.3.

5.2.1 Fonction d'autocorrélation en régime impulsionnel

Description d'une courbe d'autocorrélation

Sur la figure 5.7 nous avons représenté la courbe d'autocorrélation d'une source cohérente atténuée. Les coïncidences enregistrées aux différents temps ne contiennent pas la même information. Ainsi les coïncidences enregistrées à $\tau \approx 0$ correspondent à des impulsions contenant plus de deux photons (voir figure 5.8). Un premier photon est enregistré à $\tau = 0$, le deuxième quelques instants après. Un tel événement arrive avec une probabilité moitié de celle d'avoir deux photons dans l'impulsion [4], soit $p_2/2 = p_1^2/2 \times 1/2$.

[4] Dans un montage type Hanbury-Brown et Twiss on n'enregistre une coïncidence que si les photons ne vont pas dans le même bras. Ceci arrive en moyenne une fois sur deux.

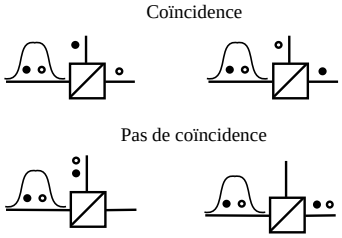


Figure 5.8: *Coïncidences enregistrées pour une impulsion contenant deux photons.*

Par contre les coïncidences enregistrées à des intervalles égaux au taux de répétition correspondent à la détection d'un photon à l'instant $\tau = 0$ et d'un autre à $\tau = nT$, où T est le taux de répétition du laser d'excitation. La probabilité d'un tel évènement est $p_1/2 \cdot p_1/2 = p_1^2/4 = p_2/2$. Cette probabilité est la même que pour le pic à $\tau = 0$. Ce raisonnement est valable car la probabilité d'avoir un photon par impulsion est faible, ainsi on peut négliger $p_1^2 \ll p_1$. L'aire du pic à $\tau = 0$ de la fonction d'autocorrelation est alors égal à l'aire du pic à $\tau = nT$. La figure 5.7(a) represente la fonction d'autocorrelation d'une source cohérente atténuée.

Dans le cas d'une source de photons uniques, la probabilité d'avoir deux photons dans une impulsion n'est plus $p_1^2/2$ mais $C_N(0)p_1^2/2$. Le nombre d'impulsions contenant deux photons est réduit d'un facteur $C_N(0)$. Ainsi on s'attend à ce que dans la courbe d'autocorrélation le pic à $\tau = 0$ n'apparaisse pas ($C_N(0) = 0$ pour une source de photons uniques parfaite). En effet pour une telle source, si l'on vient de détecter un photon à l'instant t, alors on ne détectera le prochain qu'à l'instant $t' = t + nT$.

Normalisation

Comme sous excitation continue, on peut normaliser la fonction d'autocorrélation pour la comparer à une source poissonnienne. Remarquons que l'on normalise l'aire des pics, et non pas les canaux individuels de l'histogramme. Le facteur de normalisation est obtenu de la façon suivante [24]. Pour un montage de type Hanbury-Brown et Twiss on note p_d la probabilité de détecter un photon dans une des deux photodiodes, et p_c la probabilité de détecter une coïncidence. On a donc $p_1 = 2 \times p_d$ et $p_2 = 2 \times p_c$ (le facteur 2 provient de la séparatrice $50/50$). La relation entre p_1 et p_2 donne alors la relation entre p_d et p_c, $p_c = p_d^2$. Or expérimentalement sous excitation impulsionnelle $p_d = N_d/N_T$ où N_d est le nombre de photons détectés, et N_T le nombre d'impulsions incidentes. De même $p_c = N_c/N_T$ où N_c est le nombre de coïncidences enregistrées sur l'histogramme. La condition $p_c = p_d^2$ implique que $N_c = N_d^2/N_T$, ce qui correspond au facteur de normalisation.

Exprimé en fonction du nombre de photons détectés par seconde sur chacune des photodiodes (N_1 et N_2), ainsi que du temps d'intégration T_{acq} de la courbe expérimentale et de la période de répétition T, le facteur de normalisation s'écrit : $N_1 N_2 T T_{acq}$. Dans le cas d'une source cohérente atténuée, l'aire normalisée de tous les pics vaut un. L'écart à l'unité de l'aire à $\tau = 0$, décrit par le facteur $C_N(0)$, donnera la qualité de la source à un photon.

5.2.2 Fonction d'autocorrélation d'un centre NV unique

Nous avons étudié les centres NV uniques dans des nanocristaux de diamant sous excitation impulsionnelle. Le taux de répétition du laser est réglé à 10 MHz et la durée d'impulsion 1.2 ns. L'objectif de microscope utilisé est le même que dans le chapitre 3. Les nanocristaux sont déposés sur une lamelle de silice. La recherche de centre NV unique se fait de la même façon que sous excitation

continue. Le programme informatique balaye l'échantillon à la recherche de points lumineux et une fois un centre trouvé, il s'asservit dessus.

Selon la figure 5.9, le nombre de photons par seconde et par photodiode est de 10000 à saturation pour un centre NV unique. Le niveau du fond, c'est à dire le signal à côté du centre NV est 20 fois inférieur à la fluorescence du centre. La saturation a lieu pour une puissance moyenne de 1 mW. La probabilité d'exciter le centre NV est alors proche de l'unité.

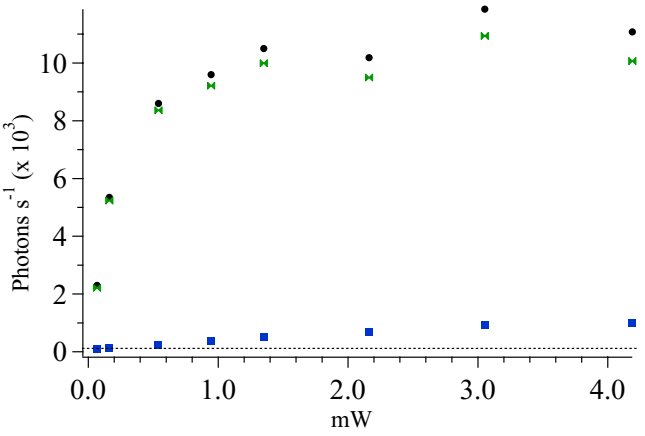


Figure 5.9: *Fonction de saturation d'un centre NV unique sous excitation impulsionnelle. La ligne en pointillé indique le niveau de la lumière parasite.*

Comme nous l'avons fait pour l'excitation continue dans la section 3.2, la figure 5.10 représente les courbes d'autocorrélation en fonction de la puissance moyenne de l'excitation impulsionnelle.

A la différence de la figure 5.7(a), qui représente la fonction d'autocorrélation d'une source cohérente attenuée, le pic à $\tau = 0$ est absent des courbes 5.10. Cet effet est la signature d'une source de photons uniques. Pour comparer qualitativement cette source à une source cohérente atténuée, il faut normaliser la fonction d'autocorrélation et mesurer le facteur $C_N(0)$. Une discussion sur la forme générale de ces courbes sera présentée dans le paragraphe 5.2.3.

5.2.2.1 Normalisation

Le taux de recouvrement entre pics adjacents est important. Ainsi pour estimer correctement l'aire de chaque pic, il faut ajuster la courbe expérimentale par une courbe théorique qui décrit indépendamment chaque pic. Nous pouvons dériver la fonction d'autocorrélation de la lumière de fluorescence d'un centre NV unique sous excitation impulsionnelle, sachant que le temps d'émission d'un photon est régi par une décroissance exponentielle du niveau excité. La fonction d'autocorrélation d'une exponentielle est donnée par l'équation :

$$g^2(\tau) \propto \int_0^\infty e^{-t\Gamma} e^{-(t+\tau)\Gamma} dt \tag{5.1}$$

$$\propto e^{-\tau\Gamma} \int_0^\infty e^{-2t\Gamma} dt \tag{5.2}$$

$$\propto e^{-\tau\Gamma} \times \frac{1}{2\Gamma} \text{ pour } \tau \geq 0 \tag{5.3}$$

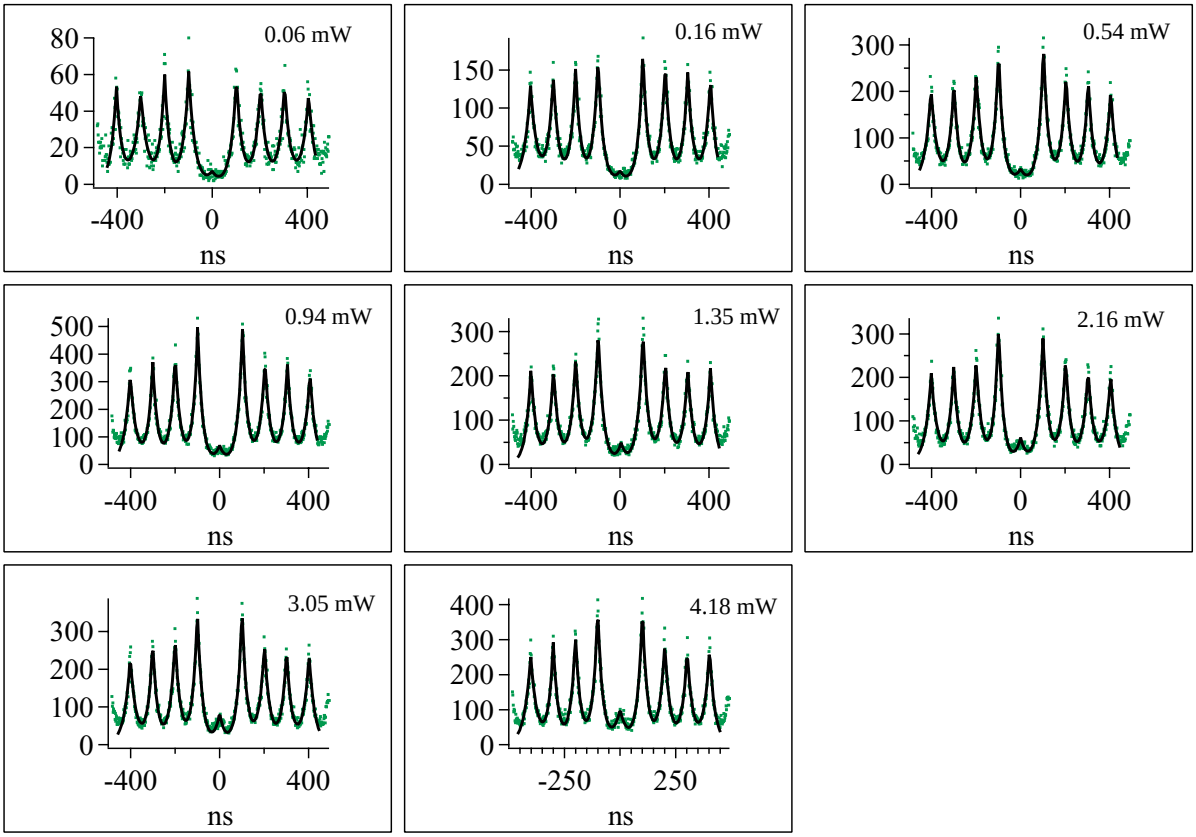


Figure 5.10: *Fonctions d'autocorrélation d'un centre NV unique en fonction de la puissance moyenne d'excitation du laser impulsionnel. Le taux de répétition est de* 10 *MHz.*

La fonction d'autocorrélation est donc aussi une fonction exponentielle de même durée de vie Γ. Le taux de recouvrement de deux exponentielles à nT et mT avec $n \neq m$ est faible puisque après $4 \times \Gamma$ l'exponentielle ne vaut plus que 0.018. Ainsi pour calculer la fonction d'autocorrélation, on peut négliger les termes

$$\int_0^\infty e^{-(t-nT)\Gamma} e^{-((t-mT)+\tau)\Gamma} dt \text{ avec } n \neq m \tag{5.4}$$

On ajuste les courbes de la figure 5.10 par la fonction :

$$\sum_{i=1}^{9} a_i e^{-\Gamma|\tau - nT|} \tag{5.5}$$

où on introduit la valeur absolue pour tenir compte de la symétrie de la fonction d'autocorrélation autour de $\tau = nT$.

Il est à noter que la durée de vie ainsi déduite vaut $\Gamma_{nc}^{impulsions} = 23.4 \pm 0.5$ ns sur 5 centres. Cette valeur est en parfait accord avec la valeur théorique $\Gamma_{nc}^{th} = 22.7$ ns déduite dans la section 3.6. Ainsi nous confirmons par une deuxième méthode le changement de la durée de vie en fonction de l'indice du milieu.

Remarque : Nous ne pouvons déduire la durée de vie avec cette méthode que si la durée de l'impulsion d'excitation est très inférieure à la durée de vie. Dans notre cas, la durée de l'excitation est d'environ 1ns, et donc cette condition est satisfaite.

5.2.2.2 Pic à $\tau = 0$

En utilisant les ajustements ci-dessus nous pouvons calculer l'aire de chaque pic. A partir de cette valeur, nous pouvons déduire la qualité de la source de photons uniques. A la différence des expériences sous excitation continue, nous n'allons pas procéder à la correction du fond dans la fonction d'autocorrélation. En effet dans les expériences de cryptographie, nous ne pourrons pas soustraire le fond à posteriori. Ainsi, la contribution du fond fait partie intégrante de la source de photons uniques et la qualité de la source se dégrade si le fond est trop important. Nous pouvons tracer la valeur de $C_N(0)$ en fonction de la puissance, représentée sur la figure 5.11

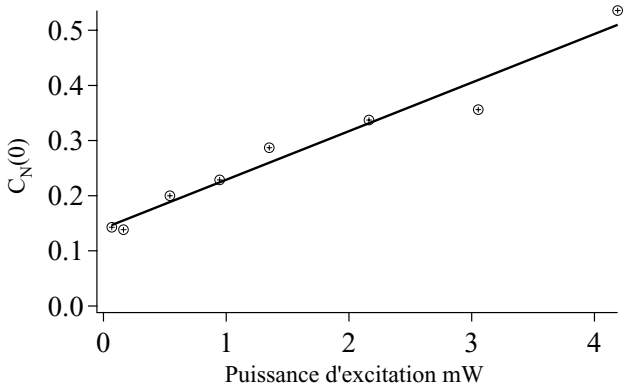


Figure 5.11: *Valeur de $C_N(0)$ en fonction de la puissance d'excitation. Pour une puissance de $1mW$ on a $C_N(0) = 0.21$*

A cause du recouvrement important des impulsions, la valeur calculée n'est qu'une borne supérieure[5]. La valeur de $C_N(0)$ croit linéairement avec la puissance d'excitation. Il y a deux raisons pour cela. Premièrement, au fur et à mesure que l'on augmente la puissance d'excitation, la fluorescence du fond augmente. Deuxièmement, une fois le centre NV saturé, si on continue à augmenter la puissance d'excitation, on augmente la probabilité d'émettre un deuxième photon (voir section 1.1.5).

5.2.2.3 Facteur de mérite (Ξ)

Pour optimiser la production de photons uniques, on peut tracer la courbe de mérite de la source impulsionnelle, c'est à dire le facteur $\Xi = S/C_N(0)$ (fig 5.12) qui représente le rapport entre le nombre de photons détectés, et le facteur $C_N(0)$ qui represente l'écart à la loi de poisson du nombre d'impulsions contenants deux photons ou plus. On remarque que la courbe présente un maximum près de la saturation (1 mW). Pour des puissances plus faibles, le facteur Ξ chute car le nombre de photons émis par le centre NV diminue. Pour des puissances plus importantes, le fond continue à augmenter linéairement en fonction de la puissance. Même si le centre NV est saturé, la probabilité de le réexciter continue à croitre avec la puissance d'excitation (voir discussion section 1.1.5).

Pour la source de photons uniques on se place donc à $P = 0.94$ mW. $C_N(0)$ vaut alors 0.21, soit un facteur 4.7 plus faible qu'une source cohérente atténuée.

[5] On verra plus tard que la valeur utilisée dans l'expérience de cryptographie quantique est bien plus faible et vaut 0.07

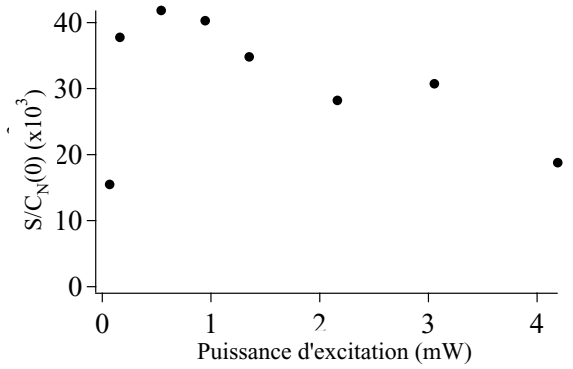


Figure 5.12: *Facteur de qualité pour une source impulsionnelle.*

5.2.3 Paramètres photophysiques sous excitation impulsionnelle

Les paramètres photophysiques du centre NV peuvent être déduits en normalisant les pics à nT. L'aire des pics décroît au fur et à mesure que l'on s'éloigne de $\tau = 0$. On exclut bien sur le pic à $\tau = 0$. La valeur du premier pic est supérieure à un, ce qui indique un effet de groupement de photons. Ceci n'est pas surprenant, compte tenu de l'existence déjà établie de l'état métastable (voir chapitre 3).

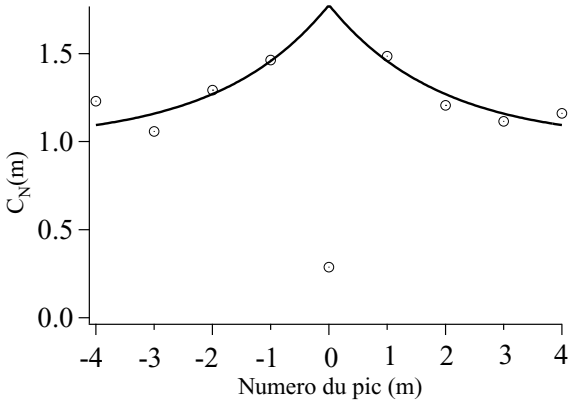


Figure 5.13: *Valeur de $C_N(m)$ pour chacun des pics (m)*

A l'arrivée d'une impulsion lumineuse sur le centre NV, celui-ci peut se trouver dans un des états suivants :

- Le centre NV est dans l'état fondamental : il sera alors excité par l'impulsion, et émettra un photon. On appellera cet état un état "Allumé" (On)
- Le centre NV est dans l'état métastable : il ne sera pas sensible à l'impulsion d'excitation, et est dans un état "Eteint" (Off).

De ce modèle simple, nous pouvons déduire une formule pour ajuster la figure 5.13 [88], et extraire le temps pendant lequel le centre est dans chacun des états On (T_{on}) et Off (T_{off}).

Soit ρ la population de l'état "On", $(1 - \rho)$ la population de l'état "Off". p est la probabilité d'aller vers l'état "Off", et q de revenir à l'état "On". L'équation différentielle pour la population ρ s'écrit :

$$\dot{\rho} = -\rho p + (1-\rho)q \tag{5.6}$$

La solution de l'équation 5.6 est donnée par :

$$\rho = \frac{q}{q+p} + \frac{p}{q+p}e^{-(p+q)t} \tag{5.7}$$

En posant $p = 1/T_{on}$ et $q = 1/T_{off}$ la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$g^2(\tau) = \frac{\rho(\tau)}{\rho(\infty)} \tag{5.8}$$

$$= 1 + \frac{p}{q}e^{-(q+p)\tau} \tag{5.9}$$

$$= 1 + \frac{T_{off}}{T_{on}}e^{-(1/T_{off}+1/T_{on})\tau} \tag{5.10}$$

La figure 5.14 représente les points expérimentaux de T_{on} et T_{off} en fonction de la puissance d'excitation. La courbe continue représente un ajustement de ces points, en utilisant la fonction d'ajustement décrite ci-dessous.

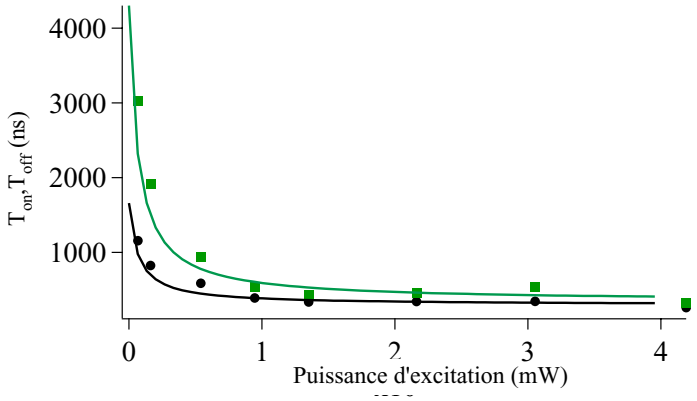


Figure 5.14: *Valeur de T_{on} (carrés) et T_{off} (cercles) en fonction de la puissance d'excitation*

On peut extraire les coefficients k_{23} et k_{32} à partir des coefficients T_{on} et T_{off}. On reprend le modèle à trois niveaux représenté au chapitre 3. A cela on ajoute l'hypothèse que $k_{23} = \beta \times \Gamma$ et $\beta < 1$. Ceci décrit simplement le fait que la probabilité d'aller vers l'état métastable est βP_e^g. Le facteur P_e^g décrit dans le chapitre 1 donne la probabilité d'être dans l'état excité. Il s'écrit

$$P_e^g = 1 - e^{-r\delta T} \tag{5.11}$$

où r est le taux de pompage (relié à la puissance du laser) et δT la durée de l'impulsion. Le temps moyen avant de se retrouver dans l'état métastable est donc

$$T_{on} = T\left(\beta P_e^g\right)^{-1} \tag{5.12}$$

$$T_{on} = \frac{T}{\beta\left(1 - e^{-r\delta T}\right)} \tag{5.13}$$

En ajustant la courbe 5.14 par l'équation 5.13, avec un taux de répétition $T = 100$ ns, on obtient $T_{on} = 440 \pm 90$ ns soit $\beta = 0.20 \pm 0.04$. On en déduit le facteur $k_{23}^{-1} = 120 \pm 20$ ns à saturation (i.e. $e^{-r\delta T} = 0$). Le facteur k_{23} mesuré ici est très proche du facteur mesuré dans le diamant massif sous excitation continue pour une puissance nulle ($(k_{23}^m)^{-1} = 185$ ns). Pour de faibles puissances d'excitation la grande valeur de T_{on} s'explique simplement par le fait que l'on n'excite pas suffisamment le centre NV.

A saturation, le facteur T_{on} reste constant. En effet pour modéliser le clignotement, on a fait l'hypothèse que la durée de l'impulsion est suffisamment faible pour que le passage vers l'état métastable soit essentiellement régi par les coefficients k_{23}^0 et k_{32}^0 à puissance d'excitation nulle. Pour voir un effet de pompage par le laser d'excitation, il faudrait une puissance bien plus importante, non accessible par notre source.

Le facteur k_{32} à saturation vaut $k_{32}^{-1} = T_{off}$ puisque c'est la seule voie pour retourner de l'état métastable vers l'état excité (et donc dans le cycle "on"). On obtient ainsi $k_{32}^{-1} = 345 \pm 35$ ns. Ce coefficient à puissance d'excitation nulle vaut $k_{32}^m = 430ns$ pour le diamant massif. On retrouve de nouveau une bonne concordance.

Le facteur cyclique $T_{cycl} = T_{on}/(T_{on} + T_{off})$ joue le même rôle que la population de l'état excité sous excitation continue. Pour déduire l'efficacité de collection, il faut en tenir compte. Pour une puissance d'excitation de $P = 1$ mW, $T_{cycl} = 0.56$.

Remarques : Dans le chapitre 3 nous avons fait une étude détaillée de la photophysique d'un centre NV dans le diamant massif. Les résultats obtenus sous excitation impulsionnelle indiquent que les comportements photophysiques du diamant massif et des nanocristaux de diamant sont tout à fait similaires.

5.2.3.1 Efficacité de collection

La courbe d'autocorrélation peut aussi nous informer sur l'efficacité de collection du montage expérimental. En effet, l'aire des pics à nT donne la probabilité de détecter un photon à l'instant nT sachant que l'on vient de détecter un à l'instant $\tau = 0$. Or pour détecter un photon à l'instant nT, il faut ne pas avoir détecté de photon aux instants $(n-1)T$. Ainsi la probabilité de détecter un photon pour l'impulsion n s'écrit en fonction de l'efficacité de collection η:

$$p(nT) = \eta \cdot (1-\eta)^{n-1} \tag{5.14}$$

Ainsi le rapport $p((n+1)T)/p(nT) = 1 - \eta$ donne l'efficacité de collection du montage.

Remarques : Il faut faire attention à ne pas confondre la probabilité de détecter un photon en fonction de l'efficacité de détection, et la probabilité de détecter un photon à cause des différents effets photophysiques dans le centre NV. En effet les effets photophysiques vont produire du groupement de photons, c'est-à-dire une fonction d'autocorrélation supérieure à un. On retrouvera une valeur unité pour τ très supérieur aux temps caractéristiques du système. Ainsi pour mesurer l'efficacité de collection en fonction de l'aire des pics à (nT), il faut choisir les pics qui sont suffisamment éloignés de l'origine pour que l'effet de groupement ait disparu.

Sur la courbe 5.15 on mesure le rapport des pics, pour les pics avec $n > 60$. On obtient en valeur moyenne $1-\eta = 0.99782$ soit une efficacité de collection par photodiode de $\eta = 0.00241$. En calculant le rapport "Nombre de photons détectés"/"Taux de répétition", on trouve $\eta = 0.00181$. La valeur est plus faible car il faut tenir compte du rapport cyclique.

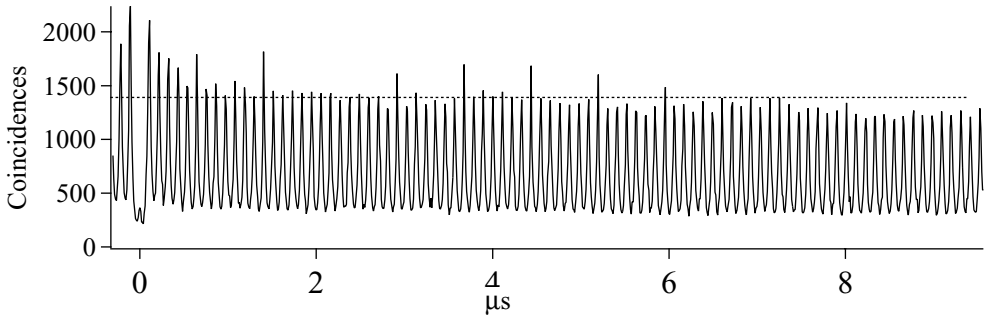


Figure 5.15: *Courbe d'autocorrélation d'intensité pour des temps longs. La ligne en pointillé est un guide visuel.*

5.3 Source de photons uniques polarisés pour la cryptographie quantique

Dans la section précédente, nous avons mis au point une source de photons uniques basée sur la fluorescence de centre NV à l'intérieur d'un cristal de diamant. Néanmoins, l'efficacité de collection ainsi que le facteur $C_N(0)$ ne sont pas satisfaisants pour une application en cryptographie quantique. Nous avons alors envisagé de déposer les nanocristaux de diamant sur un miroir diélectrique pour améliorer l'efficacité de collection. L'objectif a immersion n'est plus adapté dans cette configuration, nous l'avons remplacé par un objectif métallographique Olympus d'ouverture numérique ON=0.95. Dans la suite du manuscrit, on a travaillé à la fréquence d'excitation de 5.3 MHz, qui est la fréquence d'excitation de l'expérience de cryptographie du chapitre 6.

5.3.1 Dépôt de nanocristaux sur des miroirs diélectriques

La façon la plus simple d'augmenter l'efficacité de collection est de déposer les nanocristaux de diamant sur un miroir diélectrique. Le miroir est choisi tel qu'il possède un maximum de réflectivité dans les longueurs d'onde d'émission du centre NV, et si possible, une faible réflectivité dans la longueur d'onde de la pompe pour éviter l'apparition d'une onde stationnaire. La distance entre l'émetteur et le miroir doit être convenablement choisie afin que le phénomène d'interférence constructive redirige l'émission de la lumière vers l'objectif de microscope.

5.3.1.1 Fluorescence des miroirs diélectriques et photoblanchiment

Contrairement aux résultats des expériences de molécules uniques sur des miroirs diélectriques, nous observons, sous excitation impulsionnelle, de la fluorescence provenant du miroir. Ceci n'est pas en contradiction avec les résultats précédents, puisque dans le cas des molécules, la puissance d'excitation est environ trois ordres de grandeurs moins importante que dans notre montage. Ainsi la fluorescence des miroirs est noyée dans le bruit de fond des détecteurs.

Cependant, on observe que sous excitation impulsionnelle[6], le miroir photoblanchit. La figure 5.16 représente un balayage à faible intensité d'un miroir diélectrique sur lequel nous avons positionné le faisceau d'excitation pendant environ 10 min avec une puissance moyenne de 5 mW. La

[6] Nous n'avons pas fait l'expérience sous excitation continue

courbe de gauche représente une coupe suivant le trait blanc. On remarque que le taux de fluorescence de la zone irradiée a diminué de moitié. Pour une irradiation prolongée (de l'ordre de quelque heures), le taux de fluorescence du miroir est de l'ordre du bruit ambiant[7].

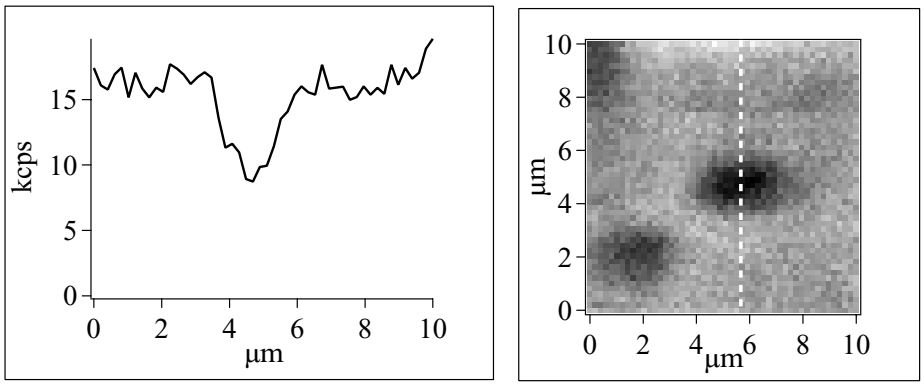


Figure 5.16: *Photoblanchiment d'un miroir diélectrique. Ce résultat est obtenu après seulement* 10 *min d'irradiation à une puissance moyenne de* 5 *mW*

Pour s'assurer que c'est bien le miroir qui fluoresce et non pas des molécules à sa surface, nous avons procédé à plusieurs nettoyages dans un bain d'acétone sous ultrasons. Ceci n'a pas changé le comportement des miroirs.

Presque tout les miroirs que nous avons pu tester présentent le phénomène de photoblanchiment [89]. Seuls les miroirs de la compagnie *Layertec* présentent une très faible fluorescence, et presque pas de photoblanchiment. Le comportement de ces miroirs est lié à leur technique de fabrication : le dépôt des couches diélectriques se fait par assistance ionique, ce qui a comme effet de "tasser" les couches et permet de réduire les pertes. Nous n'avons néanmoins pas à notre disposition de miroir *Layertec* convenable pour la longueur d'onde du centre NV.

5.3.1.2 Balayage sur miroir

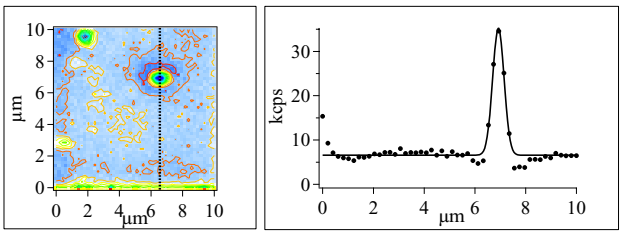


Figure 5.17: *Balayage de nanocristaux déposés sur un miroir diélectrique. Taille du pixel : 200 nm*

Parmi les miroirs que nous avons testés nous avons retenu le miroir (type M 15 (B) IP 680 nm Ta 514/01) fourni par Hervé Rigneault de l'Institut Fresnel à Marseille[8]. Pour observer les échantillons, nous avons choisi de remplacer l'objectif à immersion par un objectif métallographique de $ON = 0.95$. Cet objectif, à la difference des objectifs dits "biologiques", n'est pas corrigé pour traverser une lamelle de microscope d'épaisseur 0.17 mm, mais pour observer directement l'échantillon.

[7] Les courbes ne sont pas disponibles, à cause d'une erreur informatique. Par contre la faible valeur de $C_N(0)$ mesuré par la suite justifiera nos propos.

[8] Ce miroir présente peu de fluorescence et est approximativement adapté au spectre d'émission du centre NV

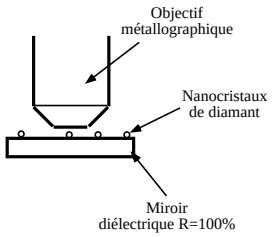


Figure 5.18: *Nanocristaux de diamant posés sur un miroir diélectrique.*

La figure 5.17 montre un balayage d'un échantillon de nanocristaux de diamant sur le miroir diélectrique (voir figure 5.18 pour la disposition expérimentale. Le scan est effectué deux heures après avoir excité la position du nanocristal à pleine puissance. Sur la droite de la figure 5.17 est représentée la coupe selon le trait en pointillés. La ligne continue représente un ajustement avec une gaussienne. On remarque qu'autour du centre, le taux de fluorescence est plus faible que sur le reste du miroir, à cause du photoblanchiment du substrat. Le centre NV quant à lui n'a subi aucune modification de fluorescence. Après photoblanchiment total de la région autour du nanocristal étudié, on obtient un rapport signal à bruit de 13.5.

5.3.1.3 Polarisation de la fluorescence

La lumière émise par un centre NV unique à l'intérieur d'un nanocristal de diamant n'a pas une polarisation bien définie. Elle varie en effet en fonction de l'orientation du dipôle vis-à-vis de l'axe optique de l'objectif. Pour polariser les photons collectés, nous plaçons un cube polariseur large bande juste avant la lentille de focalisation du filtrage spatial (fig. 5.19).

Bien que nous n'ayons pas fait d'étude extensive de la polarisation, on peut conclure à un taux de polarisation linéaire moyen de $(I_{max} - I_{min})/(I_{max} + I_{min}) = 70\%$. Il est à noter, que les niveaux fondamental et excité du centre NV sont des triplets, et donc la lumière de fluorescence n'est pas polarisée lineairement. Nous avons donc placé une lame d'onde $\lambda/2$ achromatique pour maximiser le taux de transmission du cube polariseur.

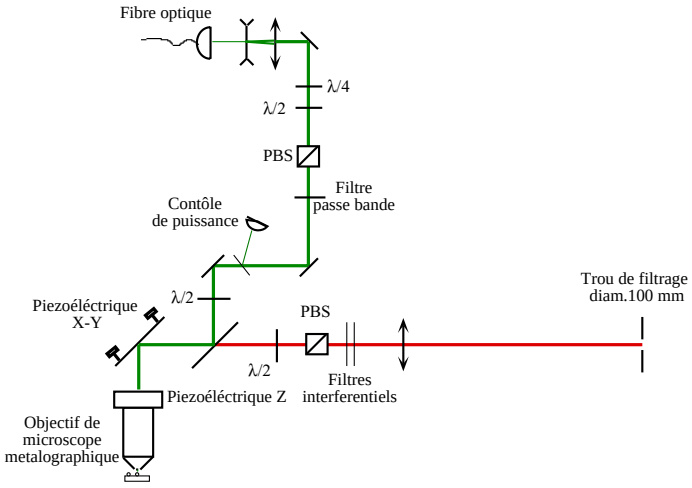


Figure 5.19: *Schéma expérimental du microscope confocal pour photons polarisés.*

5.3.2 Caractéristiques de la source de photons uniques polarisés

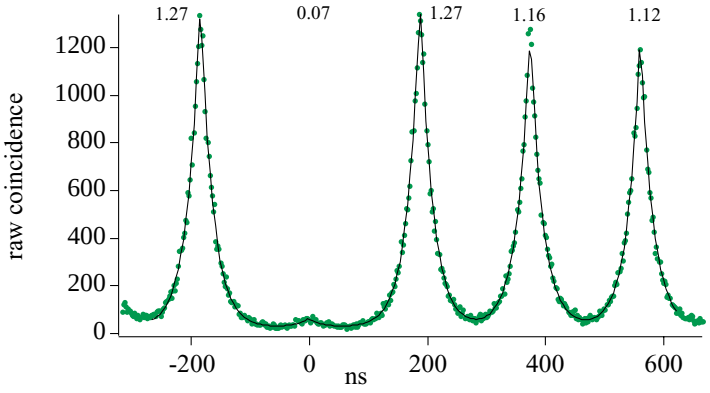


Figure 5.20: *Fonction d'autocorrélation de la source utilisée par Alice*

La figure 5.20 représente une courbe d'autocorrélation d'un centre NV unique posé sur le miroir diélectrique. La puissance d'excitation est de 0.21 mW, ce qui correspond au maximum du facteur de mérite. Cette valeur est 5 fois plus faible que dans la section précédente. En effet, l'objectif est de meilleure qualité et présente moins d'aberrations. De plus, la réflexion d'une partie de la pompe par le miroir diélectrique crée des interférences constructives du laser excitateur au niveau du nanocristal. Ces deux phénomènes expliquent la réduction observée de la puissance de saturation.

En ajustant la fonction d'autocorrélation comme dans le paragraphe 5.2.2.1, on obtient la durée de vie du centre NV sur le miroir qui est 23.06 ns. Cette valeur est très proche de celle obtenue avec les échantillons déposés sur la silice, ce qui est compatible avec l'indice $n = 1.5$ de la dernière couche du miroir.

En ajustant avec la formule 5.13 on a, dans le cas présent, $T_{on} = 1400$ ns et $T_{off} = 600$ ns, soit un rapport cyclique de $T_{on}/(T_{on} + T_{off}) = 0.71$. Cette valeur est légèrement supérieure à celle mesurée dans la section 5.2.3, mais on n'excite pas le centre NV à saturation (voir figure 5.14).

5.3.2.1 Facteur f_{il}

Nous avons introduit au chapitre 1 le facteur f_{il}, défini par $f_{il} = P_{n\geq 2}/P_{n\geq 1}$. Pour évaluer la qualité de la source de photons uniques, nous allons donner une estimation de ce facteur. Compte tenu de la faible efficacité de collection, on a $P_{n\geq 2} \approx p_2$, où p_1 et p_2 sont les probabilités de détecter un et deux photons par impulsions, et $p_2 = p_1^2/2$ pour une source poissonienne. On obtient alors :

$$f_{il} = \frac{p_2}{p_1 + p_2} \tag{5.15}$$

$$= \frac{C_N(0)\frac{p_1}{2}}{1 + C_N(0)\frac{p_1}{2}} \tag{5.16}$$

Dans un premier temps, on mesure le facteur $C_N(0)$ en ajustant la fonction d'autocorrélation avec la formule 5.5. On obtient $C_N(0) = 0.07$. Notre source émet donc 14.3 fois moins d'impulsions contenant deux photons qu'une source cohérente atténuée ayant le même p_1 . Ceci implique que $f_{il}^{PhUniques} = 0.73 \times 10^{-3}$ contre $f_{il}^{Coherente} = 10.4 \times 10^{-3}$ pour une source cohérente atténuée avec la même valeur de p_1.

La valeur théorique du facteur f_{il} pour une impulsion de durée 0.8 ns est donnée par (voir chap 1) $f_{il}^{th} = 0.36 \times 10^{-3}$. L'écart entre la théorie et notre valeur expérimentale est faible et provient essentiellement du bruit de fond résiduel.

5.3.2.2 Efficacité de collection

Pour une puissance d'excitation de 0.21 mW moyen à un taux de répétition de 5.3 MHz, on collecte 35000 photons par photodiode. Le centre étudié ici présente un taux de polarisation de 46%, ainsi le nombre de photons non-polarisés collectés et détectés par notre système pour chaque photodiode serait de 43000 photons par seconde si l'on n'avait pas de cube polariseur, soit une efficacité de production de photons uniques $\eta_{prod}^{mirr} = 0.008$. Ce nombre est à comparer aux 10000 photons à 10 MHz pour les nanocristaux déposés sur une lame de silice ($\eta_{prod}^{nano} = 0.001$). Le gain en efficacité de production de photons uniques est d'un facteur 8.

Pour estimer l'efficacité de collection, on doit tenir compte du rapport cyclique de l'émetteur. L'efficacité de collection (par photodiode) pour un nanocristal déposé sur une lamelle de microscope est de $\eta_{lamelle} = 10000/(0.54 \times 10 \times 10^6) = 0.0018$ et pour un centre NV déposé sur un miroir diélectrique $\eta_{diel} = 43000/(0.71 \times 5.3 \times 10^6) = 0.011$, ce qui équivaut à un gain net en efficacité de collection de 6. Si l'on considère que le miroir contribue d'un facteur 2 sur l'augmentation de l'efficacité, le fait de changer d'objectif augmente l'efficacité de collection d'un facteur 3.

On peut maintenant estimer le nombre de photons uniques réellement utilisables pour la cryptographie quantique. Ce nombre correspond à la somme des photons collectés par les deux photodiodes à avalanche, en tenant compte de leur efficacité de collection de $\eta_{PDA} = 0.6$. Ainsi le nombre de photons uniques en sortie du trou confocal est $N_{utile} = 35000 \times 2/\eta_{PDA} = 116000$ photons uniques polarisés par seconde. L'efficacité de production des photons uniques est $\eta_{prod}^{crypto} = 116000/5.3\text{MHz} = 0.0218$, soit 2.2% environ.

Remarque : Pour caractériser la source de photons uniques, nous nous intéressons à l'efficacité de "production" de photons uniques, et non pas à l'efficacité de collection où l'on tient compte de la correction dû au niveau métastable, puisque le chiffre intéressant en cryptographie le nombre de photons réellement utilisables pour coder l'information.

5.3.2.3 Résumé

Nous pouvons résumer les principales caractéristiques de la source stable de photons uniques polarisés, que nous avons réalisée :

- Elle délivre 116000 photons uniques polarisés linéairement par seconde. Le taux de répétition du laser impulsionnel étant de $5.3MHz$, l'efficacité globale de la source est de 2.2%.
- Le paramètre $C_N(0)$ vaut $C_N(0) = 0.07$. Le nombre d'impulsions contenant deux photons est de 81 photons $\cdot$ s^{-1} contre 1168 photons $\cdot$ s^{-1} pour une source cohérente atténuée. Le taux de fuite d'information f_{il} vaut $f_{il} = 0.73 \times 10^{-3}$, et est proche de la valeur théorique attendue.
- La durée de vie est de $\Gamma = 23$ ns. On collecte alors 86% des photons émis dans une fenêtre de $2\Gamma = 46$ ns, et 89% dans une fenêtre de 50 ns.
- A température ambiante, la largeur totale du spectre d'émission est de 100 nm, et le centre NV est intrinséquement photostable.

5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, on a étudié le centre NV dans les nanocristaux de diamant sous excitation impulsionnelle, et mis en place une source de photons uniques. Pour ces expériences, on a monté un laser impulsionnel, composé de plusieurs éléments juxtaposés. Il délivre des impulsions à $\lambda = 532$ nm, de durée 0.8 ns, à une cadence de $16/n$ MHz où n peut varier de 2 à 8.

Les mesures photophysiques que nous avons effectuées montrent un clignotement rapide de l'ordre de quelque centaines de nanosecondes, qui est responsable d'une perte d'environ 50% de l'efficacité de la source. Sous excitation impulsionnelle nous avons mesuré directement la durée de vie de l'émetteur. La valeur obtenue ($\Gamma^{-1} \approx 23$ ns) ainsi que le taux de clignotement, sont conformes aux résultats obtenus sous excitation continue.

Pour augmenter l'efficacité de collection, on a placé les nanocristaux de diamant sur un miroir diélectrique. La fraction d'impulsions contenant un photon (polarisé linéairement) est alors de $\eta_{prod} = 2\%$, et le nombre d'impulsions contenant deux photons est réduit d'un facteur 14 par rapport à une source cohérente atténuée. Nous allons maintenant décrire le montage de cryptographie quantique mis en place à partir de cette source de photons uniques, ainsi que la transmission d'une clé secrète.

Chapitre 6

Cryptographie quantique

Ce dernier chapitre est consacré aux expériences de cryptographie quantique que nous avons effectuées avec notre source de photons uniques polarisés. Après une description succincte du protocole de cryptographie quantique utilisé, je détaillerai le principe de fonctionnement de notre prototype et présenterai les résultats que nous avons obtenus. Les performances de notre montage de cryptographie seront ensuite comparées à celles d'autres réalisations actuelles de cryptographie quantique, basées sur des sources cohérentes atténuées.

6.1 Principe du protocole de cryptographie

Pour distribuer une clé de codage quantique (Quantum Key Distribution: QKD), nous allons coder l'information sur l'état de polarisation d'un photon unique. Soit un photon dont l'état de polarisation $|\psi\rangle$ dans la base de polarisation $|H\rangle$ et $|V\rangle$ (Horizontale et Verticale) est $|\psi\rangle = \alpha\,|H\rangle + \beta\,|V\rangle$ avec la normalisation $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$. Une mesure effectuée à l'aide d'un cube séparateur de polarisation revient à projeter l'état de polarisation sur l'un des vecteurs de base. La probabilité que le photon soit transmis est alors $T = |\alpha|^2$, tandis que celle qu'il soit réfléchi est $R = |\beta|^2$. Si on prépare le photon avec $\alpha = 1$ ou $\beta = 1$, alors on connaît par avance avec certitude le résultat de la mesure.

Si au contraire on choisit $\alpha = 1/\sqrt{2}$ et $\beta = \pm i/\sqrt{2}$ (polarisation circulaire), alors les probabilités pour que le photon soit transmis ou réfléchi sont égales et données par $T = R = 1/2$. Par contre, le résultat sera parfaitement déterminé si, pour faire la mesure, on effectue un changement de base et l'on se place dans la base circulaire, soit $|D\rangle = 1/\sqrt{2}\,|H\rangle + i/\sqrt{2}\,|V\rangle$ et $|G\rangle = 1/\sqrt{2}\,|H\rangle - i/\sqrt{2}\,|V\rangle$. On peut donc coder un bit d'information sur l'état de polarisation d'un photon unique, mais cette information ne pourra être lue que si l'on connaît la base de polarisation dans laquelle elle a été codée.

La propriété de la mécanique quantique qui va garantir la sécurité de la transmission de la clé est le théorème de non-clonage : il n'est pas possible de copier parfaitement un état quantique inconnu [6]. Une démonstration par l'absurde montre cette impossibilité.

Supposons qu'il existe un opérateur unitaire de clonage U capable de dupliquer l'état d'un qubit[1] sur un autre, et qui s'écrirait (en recopiant l'état du premier qubit sur le second) :

$$\begin{cases} |0\rangle\,|0\rangle \xrightarrow{U} |0\rangle\,|0\rangle \\ |1\rangle\,|0\rangle \xrightarrow{U} |1\rangle\,|1\rangle \end{cases} \tag{6.1}$$

[1] Un qu-bit est l'équivalent quantique d'un bit d'ordinateur classique. Il se distingue du fait qu'il peut être dans une superposition des états $|0\rangle$ et $|1\rangle$

On veut copier à l'aide de l'opérateur U l'état $|\varphi\rangle = (a\,|0\rangle + b\,|1\rangle)$ sur l'état $|0\rangle$, il faut donc réaliser la transformation :

$$|\varphi\rangle\,|0\rangle \xrightarrow{U} |\varphi\rangle\,|\varphi\rangle = a^2\,|0\rangle\,|0\rangle + b^2\,|1\rangle\,|1\rangle + ab\,(|0\rangle\,|1\rangle + |1\rangle\,|0\rangle) \tag{6.2}$$

Or les opérateurs de la mécanique quantique sont linéaires et d'après 6.1

$$(a\,|0\rangle + b\,|1\rangle)\,|0\rangle \xrightarrow{U} a\,|0\rangle\,|0\rangle + b\,|1\rangle\,|1\rangle \tag{6.3}$$

Les équations 6.2 et 6.3 sont contradictoires, sauf dans le cas particulier où $ab = 0$. Il n'est donc pas possible de cloner un état arbitraire. Appliqué à la cryptographie quantique, ceci implique qu'un espion n'est pas capable de recopier un qubit, choisi arbitrairement dans un ensemble d'états non orthogonaux.

6.1.1 Le protocole BB84

Le protocole BB84, introduit en 1984 par Bennett et Brassard, est la réalisation concrète de la méthode de cryptage suggérée au paragraphe précédent. C'est actuellement le protocole QKD à variables discrètes le plus utilisé. Initialement, il a été prouvé que le protocole est inconditionnellement sûr à condition d'utiliser des particules uniques et des détecteurs parfaits [90, 91]. Par la suite, il a été prouvé sûr pour des états plus proches des réalisations expérimentales, à condition de prendre quelques précautions [12, 13] (voir discussion à la fin de ce chapitre).

Dans le protocole BB84 on choisit deux bases de codage de l'information. La première est la base des polarisations linéaires horizontales et verticales $|H\rangle$ et $|V\rangle$, la seconde correspond aux polarisations circulaires droite et gauche (respectivement $|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - i\,|V\rangle)$ et $|G\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + i\,|V\rangle)$).

Si l'on n'utilise qu'un seul photon à la fois, il est impossible de connaître exactement l'état du photon, si l'on ne connaît pas la base dans laquelle il a été préparé. En utilisant ces deux bases, on peut écrire le protocole de communication (BB84) entre Alice et Bob :

- Alice choisit au hasard une base puis une polarisation dans cette base.
- Elle prépare ainsi un photon unique dans un des quatre états ($|H\rangle\ |V\rangle\ |D\rangle\ |G\rangle$) qu'elle envoie à Bob.
- Bob choisit au hasard une base dans laquelle il va faire la mesure de l'état de polarisation.
- A la fin de la communication dite quantique, Alice et Bob révèlent publiquement la base qu'ils ont choisie pour coder ou analyser la polarisation. Dans le cas où le choix n'est pas le même, le bit reçu est écarté. Sinon il est utilisé comme bit de la clé secrète. Cette information n'est échangée que pour les bits où Bob a reçu un photon.

Le tableau 6.1 résume le protocole BB84.

Remarques : On remarque qu'à la fin de la communication, Alice et Bob ne partagent que quelques bits d'information. Ceci n'est pas un problème en soi, puisque la communication ne transporte aucun message. Elle est seulement constituée d'une suite de nombres aléatoires, qui forment la clé secrète. Alice et Bob peuvent ensuite utiliser cette clé pour coder un message qu'ils échangerons par voie classique[2]. Le codage de choix sera bien sûr le code de Vernam si la clé est aussi longue que le message.

[2] Par voie classique on désigne tous les moyens de communications usuels

	Bit 1	Bit 2	Bit 3	Bit 4	Bit 5	Bit 6	Bit 7	Bit 8	Bit 9	Bit 10
Alice Base	HV	HV	DG	DG	DG	HV	DG	DG	HV	HV
Alice Bit	0	1	1	0	0	0	1	1	1	0
Bob Base	HV	DG	DG	HV	DG	HV	DG	HV	HV	DG
Bob Bit	0	1	1	1	0	0	1	0	1	0
Clé Secrete	0	-	1	-	0	0	1	-	1	-

Tableau 6.1: *Tableau récapitulatif du protocole BB84*

Ce protocole est en principe inconditionnellement sûr. Néanmoins, des imperfections dans la réalisation peuvent créer des failles de sécurité. Elles seront étudiées plus tard dans ce chapitre.

6.2 Réalisations actuelles

Depuis la première expérience de cryptographie quantique réalisée en 1992 par Bennett et Brassard sur une distance de 30 cm [8], plusieurs expériences se sont succédées sur différentes distances et avec différents milieux de propagation. Ces expériences ont été réalisées avec deux approximations de sources de photons uniques : une source cohérente atténuée, et une source de photons intriqués. Un très bon aperçu de l'état de l'art est donné dans la référence [10].

6.2.1 Source cohérente atténuée

Une façon simple de simuler une source à photons uniques est d'atténuer la lumière d'un laser impulsionnel. La statistique du nombre de photons par impulsion est régie par la distribution poissonnienne. Ainsi pour un nombre moyen de $\mu = 0.1$ photon par impulsion, on obtient 90.5% d'impulsions vides, 9% d'impulsions contenant 1 photon, et 0.5% d'impulsions contenant deux photons.

A l'air libre, une clé secrète a été échangée sur 1.9 km [92] ainsi que sur 0.5 km [93]. Les problèmes essentiels sont les fluctuations de l'atmosphère, ainsi que la lumière parasite. La réalisation la plus récente a atteint une portée de 23.4 km en montagne [94].

Dans des fibres optiques, l'échange de clé est compliqué à cause de la biréfringence naturelle des fibres optiques, qui introduit des erreurs dans la polarisation. La biréfringence dépend aussi des contraintes que subit la fibre. Une méthode possible pour éliminer ce défaut, mise en œuvre à l'Université de Genève, est de faire effectuer à la lumière un aller-retour dans la fibre optique, après réflexion sur un miroir de Faraday [95, 96]. Ces systèmes sont actuellement disponibles commercialement chez idQuantique [11].

Les prototypes décrits plus haut utilisent la polarisation pour coder l'information. Il est également possible d'utiliser comme base de codage la phase qu'acquiert le photon unique en traversant un interféromètre chez Alice, et chez Bob. Cette base de codage à l'avantage d'être insensible à la biréfringence de la fibre. On peut citer plusieurs réalisations sur 48 km [97, 98]. Par contre cette méthode nécessite une bonne stabilisation des interféromètres.

Une autre approche originale [99] utilise la modulation de la phase des photons uniques. L'avantage de cette méthode est de ne pas avoir besoin de stabiliser les interféromètres. De plus, tout les éléments optiques sont fibrés, tiennent dans un espace réduit, et sont faciles à mettre en place. Par contre, il est nécessaire de transmettre aussi un signal RF (hyperfréquence) de synchronisation pour pouvoir reconstituer la phase optique.

6.2.2 Avec des photons intriqués

Un autre implémentation de la cryptographie quantique est possible suivant le protocole proposé initialement par Artur Ekert [100]. Pour cela on utilise une paire de photons intriqués, et Alice et Bob reçoivent chacun un photon de la paire. De nouveau Alice et Bob choisissent indépendamment la base de mesure pour chaque photon, et révèlent leur choix à la fin de la transmission. Pour détecter une intervention d'Eve, Alice et Bob effectuent ensuite une expérience de violation des inégalités de Bell. Dans le cas où le message a été intercepté, l'intrication disparaît et les inégalités de Bell ne sont pas violées. Ce protocole a été mis en œuvre pour des paires intriquées en polarisation [101, 102], ainsi qu'en temps-énergie [103, 104].

6.2.3 Avec des photons uniques

Dans la première partie de la thèse nous avons mis en place une source efficace de photons uniques, stable et facile à mettre en œuvre. Dans cette partie, nous allons utiliser cette source, pour la distribution de clé quantique. Nous allons voir que le prototype ainsi réalisé peut transmettre environ 8000 bits secrets par seconde sur une distance de 50 m, ce qui est la première réalisation de cryptographie quantique avec des photons uniques "à la demande" [105]. Le démonstrateur se compose de deux parties : l'émetteur (Alice), et le récepteur (Bob), que nous allons décrire successivement.

6.3 Alice

La partie émetteur du démonstrateur comporte la source de photons uniques, un modulateur électro-optique pour coder l'information, ainsi que toute l'électronique de contrôle pour synchroniser l'expérience.

6.3.1 Le modulateur électro-optique

La modulation de la polarisation suivant un des quatre états de BB84 est obtenue grâce à un modulateur électro-optique. Son principe de fonctionnement est équivalent à une lame de phase, dont on peut choisir le déphasage en fonction de la tension appliquée, l'application d'un champ électrique statique ayant pour effet de modifier les indices du cristal anisotrope. Le déphasage (Γ) introduit par le cristal entre les deux modes propres de propagation va modifier la polarisation de l'onde en sortie du cristal. On a:

$$\Gamma = \frac{2\pi\Delta n L}{\lambda} = \frac{2\pi m \lambda_0}{\lambda} \tag{6.4}$$

où $\Delta n = n_e - n_o$ est la différence d'indice entre l'axe ordinaire et extraordinaire, L la longueur du cristal, et m l'ordre du modulateur pour la longueur d'onde λ_0. Le déphasage n'est pas le même pour toutes les longueurs d'onde, et il varie d'autant plus que l'ordre est élevé. Pour moduler une source à spectre large comme les centres NV, il faudrait travailler avec un ordre faible, de préférence égal à un, et donc une petite valeur de L. Mais dans un modulateur électro-optique, une longueur de cristal L relativement importante est nécessaire pour pouvoir introduire un déphasage de π sans avoir à appliquer une tension trop importante. Il est donc nécessaire de compenser cet effet.

6.3.1.1 Compensation

A tension nulle, on souhaite que le modulateur n'introduise pas de déphasage. Pour cela on utilise deux cristaux orientés de façon à ce que les axes ordinaire et extraordinaire de l'un soient respectivement confondus avec les axes extraordinaire et ordinaire de l'autre. Ainsi le déphasage accumulé à la traversée du premier cristal est annulé par le deuxième. Cependant, de petites imperfections sur la taille des cristaux ne permettent en général pas de s'affranchir de la totalité de la biréfringence. Nous devons donc éliminer cette biréfringence résiduelle avec une lame de compensation. Pour mesurer l'ordre résiduel du modulateur, on le place entre polariseur et analyseur croisés. La transmission après l'analyseur s'écrit :

$$T = sin^2\left(\Gamma/2\right) \tag{6.5}$$

En éclairant le système avec une lumière blanche, on obtient en sortie un spectre cannelé. Comme on l'observe sur la figure 6.1, l'ordre résiduel du modulateur est encore relativement élevé.

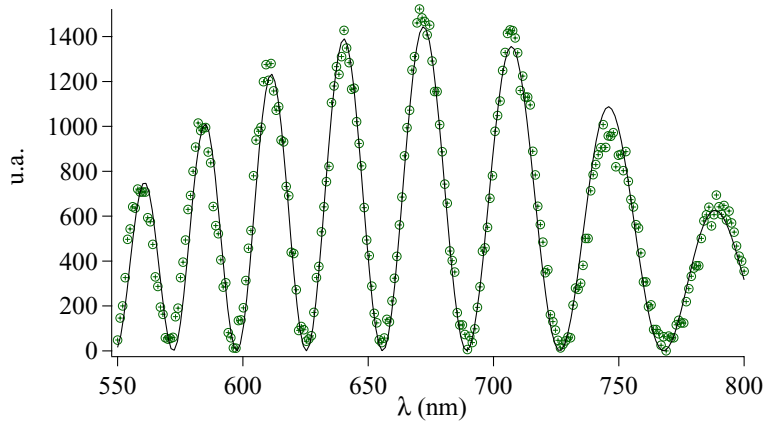


Figure 6.1: *Spectre de la lumière blanche après passage par le modulateur électro-optique placé entre polariseur et analyseur croisés (cercles). La courbe représente un ajustement avec une lame de quartz.*

La compensation du modulateur n'est pas évidente. En effet, la lame de compensation doit avoir une dépendance en longueur d'onde de l'indice ordinaire et extraordinaire proche de celle du cristal du modulateur. Notre modulateur est composé de quatre cristaux d'ADP (Ammonium Dihydrogen Phosphate) en ordre de compensation. Par contre la lame de compensation sera en quartz, en raison de contraintes de fabrication. Les valeurs de n_o et n_e pour le quartz et l'ADP sont données dans le tableau 6.2 pour le domaine spectral qui nous intéresse.

Un ajustement linéaire de Δn^q et Δn^{ADP} sur une plage de 660nm à 800nm donne $\Delta n^q = 0.009769 - 1.1177 \cdot 10^{-6} \times \lambda(nm)$ et $\Delta n^{ADP} = -.053125 + 12.944 \cdot 10^{-6} \times \lambda(nm)$. Il y a donc un ordre de grandeur entre la pente du quartz et celle de l'ADP. La simulation montre qu'il est quand même possible de compenser approximativement les deux cristaux sur une plage de 100 nm. Comme le spectre d'émission d'un centre NV a une largeur à mi-hauteur de 50 nm, cette compensation pourra être suffisante.

Pour calculer l'épaisseur de la lame de compensation à utiliser, il faut ajuster la courbe expérimentale donnée sur la figure 6.1 avec la formule 6.5, en prenant en compte la dépendance de Δn en fonction de la longueur d'onde pour la lame de quartz. On obtient ainsi l'épaisseur de la lame à

λ (nm)	n_o^q	n_e^q	Δn^q	λ (nm)	n_o^{ADP}	n_e^{ADP}	Δn^{ADP}
508.6	1.54822	1.55746	0.00924	532	1.52775	1.4815	-0.04625
589.3	1.54424	1.55335	0.00911	589.3	1.52418	1.47869	-0.045450
670.8	1.54145	1.55047	0.00902	632.8	1.5222	1.4773	-0.0448999
768.2	1.53903	1.54794	0.00891	656.3	1.52097	1.47633	-0.0446399
832.5	1.53773	1.54661	0.00888	694.3	1.5195	1.4754	-0.0441
				706.5	1.5189	1.47489	-0.04401

Tableau 6.2: *Indices n_o et n_e pour le quartz et l'ADP en fonction de la longueur d'onde*

utiliser pour compenser le modulateur, qui est de 1.378 mm, soit un ordre de $m = 17.68$ pour une longueur d'onde de 700 nm.

Par ailleurs nous avons jusqu'à présent supposé que l'incidence sur la lame de compensation était normale à la surface. Mais si l'on incline la lame autour de l'axe optique, ou bien perpendiculairement à celui-ci, l'ordre vu par l'onde lumineuse est modifié. Nous disposons ainsi d'un réglage fin de la compensation. L'équation 6.6 donne l'évolution de l'ordre en fonction du vecteur d'incidence $\vec{u} = (x, y, z)$.

$$m = \frac{e}{\lambda} \times \left[n_e \sqrt{1 - \frac{x^2}{n_o^2} - \frac{y^2}{n_e^2}} - n_o \sqrt{1 - \frac{x^2 y^2}{n_o^2}} \right] \tag{6.6}$$

où e est l'épaisseur de la lame, n_o l'indice ordinaire et n_e l'indice extraordinaire. Sur la figure 6.2 on a reporté l'ordre de la lame en fonction de l'inclinaison de la lame de quartz perpendiculairement à l'axe optique, ou autour de l'axe. On remarque qu'avec une inclinaison de 15^o on obtient un changement de l'ordre de 0.5. Cette inclinaison permet donc effectivement un réglage fin de la compensation.

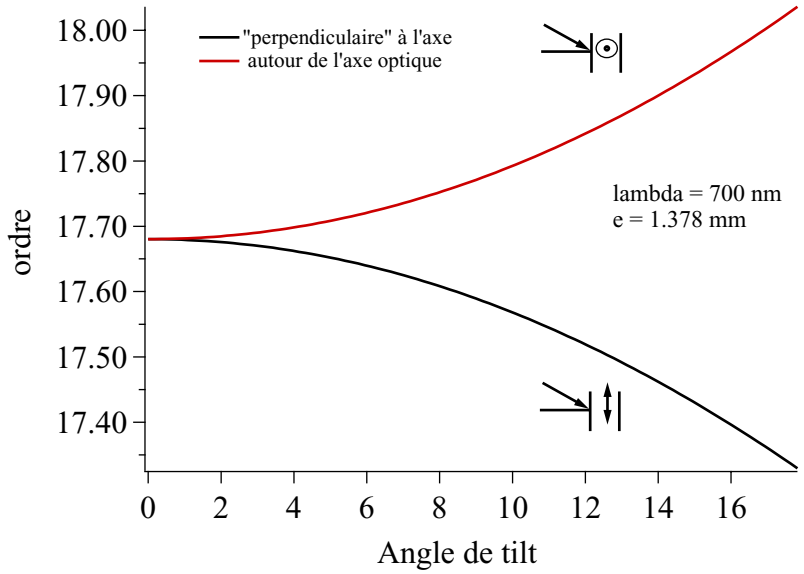


Figure 6.2: *Ordre de la lame de compensation en fonction de l'angle d'inclinaison*

6.3.1.2 Modulation

Nous allons maintenant étudier la dépendance du déphasage en fonction de la tension appliquée. Celle-ci s'écrit, pour un modulateur compensé:

$$\Gamma = \pi \frac{V}{V_\pi} \tag{6.7}$$

avec $V_\pi = \frac{\lambda d}{n_o^3 r L}$ où L est la longueur du cristal, d son épaisseur et r un facteur du tenseur électro-optique. V_π correspond à la tension qu'il faut appliquer sur le modulateur pour avoir l'équivalent d'une lame demi-onde: si la polarisation incidente est à 45^o de l'axe optique du modulateur, ce dernier tournera la polarisation de 90^o. La valeur de V_π est fixée par les dimensions et la composition du cristal. Dans le cas de notre modulateur (*Linos-LM0202*) la tension V_π donnée par le constructeur est $V_\pi = 160$ V à 488 nm, ce qui implique que $V_\pi = 230$ V à 700 nm.

La fréquence maximale de modulation est fixée par la charge capacitive du modulateur, soit une coupure à -3 dB à 100 MHz.

Pour le codage du protocole BB84, il nous faut 4 tensions différentes qui produiront 2 polarisations linéaires, et 2 circulaires. On choisit donc les tensions V_0, $V_{\pi/2}$, V_π et $V_{3\pi/2}$ soit 0V, $115V$, 230V, et 345V, ce qui équivaut aux polarisations H D V G (Horizontale, Circulaire Droite, Verticale, Circulaire Gauche) respectivement.

6.3.1.3 Précision nécessaire sur la compensation

Pour réussir nos expériences de cryptographie quantique, la compensation par la lame de quartz doit être très précise. Dans le tableau ci-dessous nous avons reporté le taux d'erreur pour chacune des polarisations du protocole BB84 en fonction de l'ordre résiduel après compensation par la lame de quartz. Ces taux sont obtenus en modélisant le spectre d'émission d'un centre NV (voir figure 2.2) par une gaussienne centrée à 700, nm avec une largeur à mi-hauteur de 50 nm.

m	H	V	D	G	Moyenne
0	0	0.24%	0.24%	0.93%	0.35%
1	0.07%	2.1%	2.1%	3.6%	2.1%
2	3.6%	5.6%	5.6%	7.7%	5.6%

D'après le tableau on voit qu'il faut avoir une précision de 1 ordre sur la compensation pour minimiser le taux d'erreur global.

6.3.1.4 Mise en œuvre

Lors du protocole BB84, pour chaque photon, Alice choisira aléatoirement l'une des quatre tensions de polarisation. La commutation entre deux tensions successives doit s'effectuer à la cadence imposée par la source de photons uniques. Plus précisément, le taux de répétition de la source est de 5.3 MHz $= 1/187.5$ ns (voir section 5) et la durée de vie du centre NV de $\Gamma_{NV}^{-1} \approx 23$ ns (voir section 3.6.1 et 5.2.2.1). La durée de vie donne une incertitude sur le temps d'arrivée du photon au niveau du modulateur. En effet 90% des photons seront émis dans une fenêtre de $2.2 \times \Gamma_{NV}^{-1}$ après l'impulsion excitatrice. La tension aux bornes du modulateur doit donc être impérativement maintenue pour une durée minimum de 50 ns. Il ne reste donc que $187.5 - 50 = 137.5$ ns pour basculer d'une tension à la suivante. En pratique, la tension ne se stabilisera pas tout de suite à la valeur attendue, il faut donc

prévoir un certain temps pour que le système atteigne son équilibre. Ainsi, il faut que la tension de contrôle puisse basculer de 0 V à 350 V en moins de 100 ns.

Nous avons réalisé, avec A. Villing du service d'électronique de l'Institut d'Optique, un commutateur de haute tension à haute fréquence (CHTHF). Les détails du fonctionnement ainsi que les schémas électriques sont décrits dans l'annexe A.1. Ce commutateur a un temps de montée $10\%-90\%$ de 50 ns entre 0 et 500 V.

6.3.2 L'électronique de contrôle

L'électronique de synchronisation est une partie importante de l'expérience. Elle doit contrôler le laser impulsionnel, commander l'acousto-optique pour diviser la fréquence, puis produire un nombre aléatoire et appliquer la tension sur le modulateur électro-optique en commandant le CHTHF. Le moyen le plus simple de réaliser ces fonctions est d'utiliser une puce programmable FPGA (Xilinx). On peut ainsi écrire un programme [3] qui se chargera des différentes opérations.

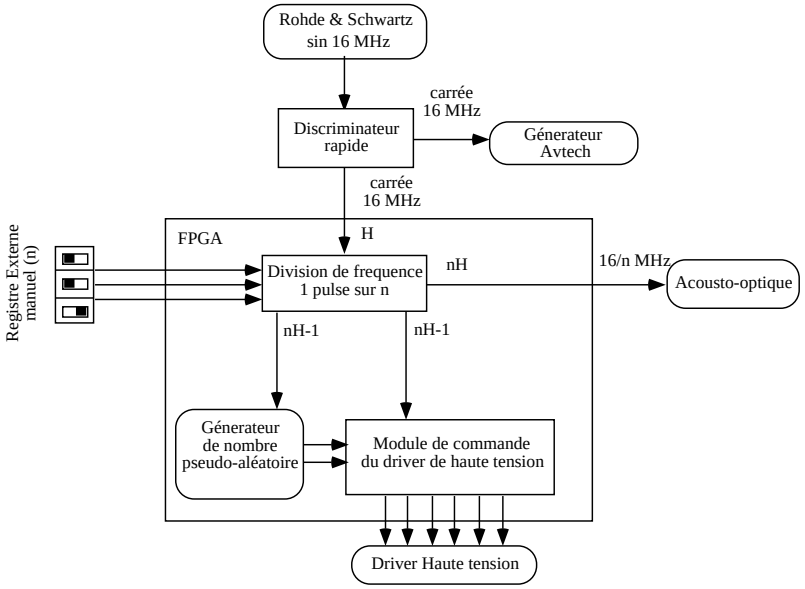


Figure 6.3: *Schéma des synchronisations*

Le schéma des synchronisations est décrit sur la figure 6.3. L'entrée est l'horloge externe stable de 16 MHz décrite en section 6.3.2.1. Un registre externe permet de choisir le facteur de division. Tous les n coups de l'horloge, le module délivre un signal d'une largeur d'approximativement 20 ns qui commande l'acousto-optique. Ce signal est retardé à l'aide d'un module électronique réglable par pas de 5 ns, ainsi que de cables BNC de longueurs appropriées, pour être synchronisé avec l'arrivée de l'impulsion lumineuse au niveau de l'acousto-optique.

6.3.2.1 Horloge stable

L'horloge de base au niveau de l'émetteur doit être très stable. En effet, Alice et Bob ne pourront comparer correctement leurs bits que s'ils sont d'accord sur l'instant d'arrivée de chaque photon. Dans notre montage, Bob ne connaît que l'instant de départ de l'échange de clé, les tops d'horloge ne

[3] La programmation en langage VHDL a été réalisée par Frédéric Moron du service électronique de l'Institut d'Optique

sont pas transmis d'Alice à Bob, qui doit se fier à l'indication de sa propre horloge. Ainsi l'horloge pilote (d'Alice), doit être stable pendant toute la durée de l'échange de la clé. Dans notre cas, la durée de la communication est de 10 ms avec un taux de répétition de 5.3 MHz, et il faut une précision d'horloge à mieux que 10^{-5}. L'horloge d'Alice est composée d'un synthétiseur Rohde & Schwartz délivrant une sinusoïde de fréquence 16 MHz, qui est mise en forme par un discriminateur rapide. On transforme ainsi le signal sinusoïdal en un signal rectangulaire de même fréquence, dont la largeur est d'environ 10 ns (voir figure 6.3). L'horloge ainsi créée a la même précision que le synthétiseur, soit une stabilité meilleure que 10^{-6}.

6.3.2.2 Générateur de nombres aléatoires

Alice à besoin de choisir deux nombres aléatoires pour chaque photon, un pour la base, l'autre pour la valeur du bit. En pratique, le codage utilisé dans cette expérience est le suivant :

Code (MSB-LSB)	Polarisation
00	Horizontal
01	Circulaire Droite
10	Vertical
11	Circulaire Gauche

Nous avons besoin d'un générateur de nombre aléatoire pour le bit de poids fort (Most Significant Bit: MSB), et un autre pour le bit de poids faible (Less Significant Bit: LSB).

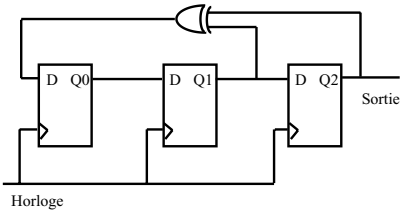
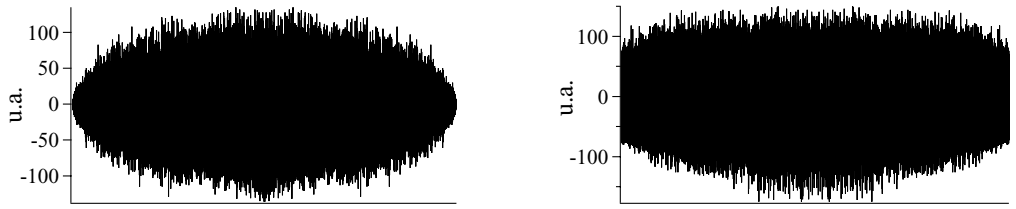


Figure 6.4: *Registre à décalage à* 3 *bits dans la configuration de Fibonacci. Les registres* 1 *et* 2 *sont reliés à l'entrée du registre* 0 *par une porte XOR*

En pratique nous utilisons un générateur de nombre pseudo-aléatoire, pour chaque bit, basé sur un registre à décalage linéaire dans la configuration de Fibonnaci [106, 107], facile à coder sur la puce FPGA déjà utilisée pour les synchronisations. Un registre à décalage est tout simplement l'enchaînement de plusieurs bascules. La bascule N prend la valeur de la bascule N-1 à chaque coup d'horloge. Ce processus est totalement déterministe. Par contre, dans le cas d'un cablage type Fibonnaci (voir figure 6.4), on ne peut deviner la $\mathrm{K}^{\mathrm{ième}}$ valeur du dernier registre même si on connaît les (K-1) valeurs précédentes. La séquence des nombres semble aléatoire. Nous utiliserons deux de ces registres comme générateurs de nombres aléatoires.

Le premier générateur de nombres aléatoires fournit la valeur du MSB. Il est composé de 16 registres, et l'on relie à l'entrée les registres numéro $Q16, Q15, Q13, Q4$, via un OU Exclusif. Le deuxième générateur code la valeur du LSB et il est constitué de 17 registres. On relie à l'entrée les registres numéro $Q17$ et $Q14$ par un OU exclusif.

Ainsi avec le registre à 16 bits (ou bascules) le générateur est remis à zéro après $2^{16} - 1 = 65535$ valeurs, tandis que pour le registre à 17 bits le générateur n'est remis à zéro qu'après $2^{17} - 1 = 131071$ valeurs. En pratique on initialisera le deuxième registre en même temps que le premier. Nous utilisons deux registres de longueur différente pour éviter toute corrélation entre les deux registres.



Autocorrelation MSB Autocorrelation LSB

Figure 6.5: *Fonction d'autocorrélation des valeurs des générateurs de nombres aléatoires MSB et LSB*

La fonction d'autocorrélation circulaire des nombres produits par les générateurs de nombres pseudo-aleatoires ne présentent aucune corrélation significative (voir figure 6.5). La suite des nombres aléatoires peut être simulée sur un ordinateur par un programme simple qui décrit la connexion des bascules. On connait ainsi les bits codés et envoyés au récepteur.

Signalons la possibilité d'utiliser un générateur quantique de nombres aléatoires, décrit en détail dans les références [108, 109, 110]. Il est constitué d'une source lumineuse atténuée, d'une séparatrice $50/50$ et deux photodiodes à avalanche. Chaque photon incident sur la séparatrice à une probabilité égale à 0.5 d'être transmis ou réfléchi, ce qui fournit le bit aléatoire désiré. Moyennant quelques astuces pour compenser les imperfections de la lame séparatrice, la chaîne de bits ainsi obtenue est complétement aléatoire.

6.3.3 Montage expérimental

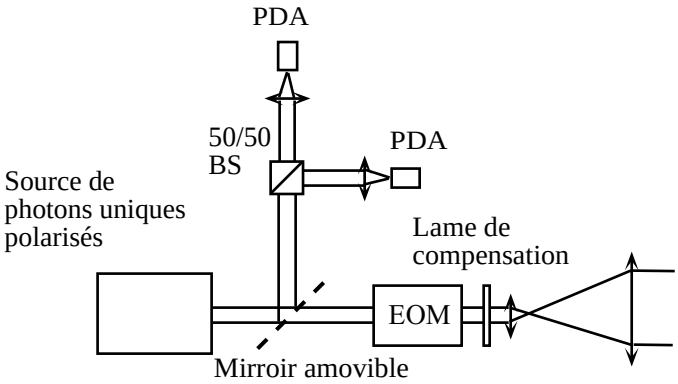


Figure 6.6: *Montage expérimental d'Alice*

Le montage expérimental (fig.6.6) est très similaire à celui décrit dans les chapitres précédents. La source de photons uniques englobe le laser impulsionnel et le microscope confocal (fig.2.5) qui ont été décrits en détail dans la section 5.3. Les nanocristaux de diamants sont posés sur un miroir diélectrique. Un cube polariseur permet de polariser la lumière du centre NV. Une lame achromatique $\lambda/2$ devant le cube permet de tourner la polarisation pour maximiser la transmission. La lumière issue du microscope confocal peut être étudiée par un dispositif de corrélation type Hanbury-Brown et Twiss. On contrôle ainsi la qualité de la source de photons uniques.

Les photons polarisés sont codés par le modulateur électro-optique et envoyés à Bob à l'aide d'un télescope. Le diamètre du faisceau est de 2 cm pour éviter la diffraction. Le centre NV que nous avons utilisé a un taux de polarisation de 46%. Cette valeur varie certainement avec l'orientation du dipôle, mais cet effet n'a pas été étudié systématiquement : nous avons seulement recherché un nanocristal présentant le moins de bruit de fond possible, c'est-à-dire le $g^{(2)}(0)$ le plus faible possible.

6.3.3.1 Qualité des photons uniques

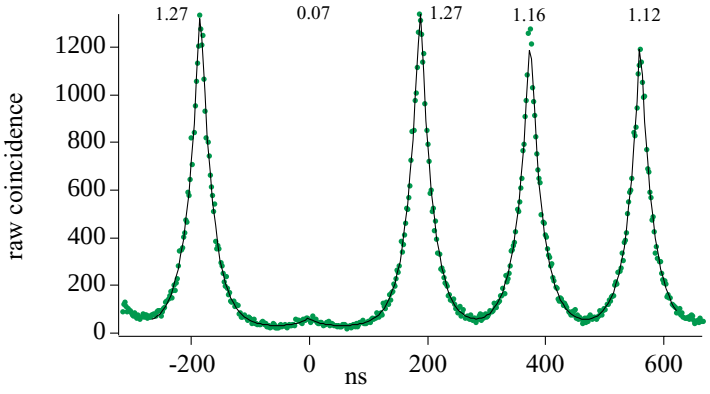


Figure 6.7: *Fonction d'autocorrélation de la source utilisée par Alice*

La fonction d'autocorrélation est présentée sur la figure 6.7. La valeur de $C_N(0)$ mesurée est de 0.07, soit 14 fois plus faible qu'une lumière avec une statistique poissonnienne. La puissance d'excitation est de 0.2 mW, soit tout juste au moment où commence la saturation. On maximise ainsi le facteur de mérite Ξ (voir section 1.5,5.2.2.3). La probabilité d'exciter le centre NV est proche de 0.92. Le taux de répétition est de 5.3 MHz et la largeur de l'impulsion d'excitation est de $\delta T = 0.8$ ns. Le temps d'intégration de la fonction d'autocorrélation est de 166 s. Nous avons mesuré environ 35000 photons par seconde sur chaque PDA. En tenant compte de l'efficacité des PDA de $\eta_{PDA} = 0.6$ nous obtenons 116000 photons uniques polarisés par seconde utilisables pour la cryptographie quantique, soit un rendement de notre source de $\eta_{prod} = 2.2\%$. La transmission du modulateur est de $T_{EOM} = 0.65$. Ainsi le nombre de photons uniques codés envoyés par Alice vers Bob est de 75800s^{-1}, soit en moyenne $\mu = 0.014$ photons par impulsion.

En résumé les caractéristiques de la station d'Alice sont :

- Fréquence d'excitation du centre NV : 5.3 MHz
- Taux de photons uniques codés : 75800 s^{-1} soit un nombre moyen de photons par impulsion : $\mu = 0.014$.
- Le taux d'impulsions contenant deux photons est de 37 s^{-1} seulement, contre 520 s^{-1} pour une source cohérente attenuée ayant le même paramètre μ.
- La base et la polarisation de chaque photon sont codées à l'aide d'un modulateur électro-optique. Les nombres pseudo-aléatoires sont générés par deux registres à décalage.
- Une électronique de contrôle, synchronisée sur une horloge stable à mieux que 10^{-6}, gère l'ensemble de l'expérience.

6.4 Bob

Nous allons maintenant décrire la partie récepteur du montage. Nous avons choisi une méthode passive de choix de la base de mesure. Pour paraphraser une citation célèbre, "nous laissons Dieu jouer aux dés" [4]. Les photons seront soit réfléchis, soit transmis par une lame séparatrice $50/50$, indépendamment de leur polarisation.

6.4.1 Montage expérimental

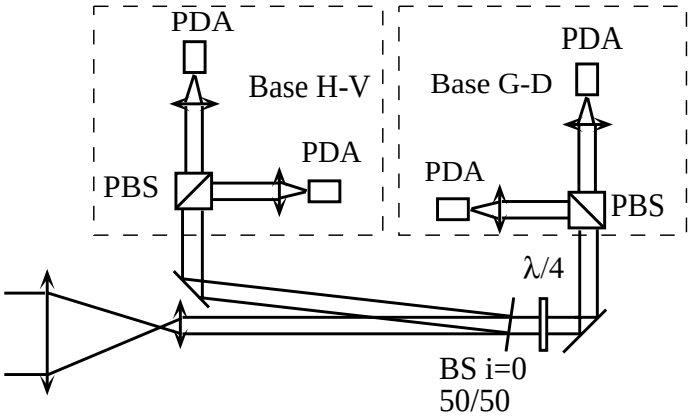


Figure 6.8: *Montage expérimental de Bob*

La figure 6.8 présente le montage expérimental utilisé pour la détection. Les photons sont collimatés en un faisceau plus petit avec exactement le même télescope que celui d'Alice. Le choix de la base est fait de façon aléatoire par une séparatrice $50/50$ large bande (Layertec) à incidence quasi nulle. L'angle est de seulement 2^o. Dans cette configuration, la polarisation de la lumière réfléchie, ou transmise n'est pas affectée. Les photons qui sont réfléchis seront analysés dans la base $(|H\rangle, |V\rangle)$ par un cube polariseur large bande (Gsänger). De même les photons transmis seront analysés dans la base $(|D\rangle, |G\rangle)$ après avoir traversé une lame achromatique (Newport) $\lambda/4$ convenablement réglée. Les photons sont détectés par quatre photodiodes à avalanches (EG & G) identiques à celles qui ont été utilisées dans le chapitre 3. Nous utilisons des miroirs en argent pour avoir une réflexion maximale, indépendamment de la polarisation.

6.4.1.1 Détection

Les quatre photodiodes à avalanches (PDA) sont reliées aux quatre voies d'un oscilloscope numérique (LeCroy). Chaque voie à une profondeur mémoire d'un million de points et un taux d'échantillonnage maximal de 1 GHz. Sachant que le signal TTL d'une PDA a une durée d'environ 25 à 30 ns, nous pouvons diminuer le taux d'échantillonnage à 100 MHz, c'est-à-dire 1 point toutes les 10 ns. Ainsi en une seule fois, nous pouvons acquérir 10 ms de clé. Sachant que la cadence de production des photons uniques est de 5.3 MHz, Alice doit coder 53000 bits distincts. Ceci justifie le fait que les générateurs de nombres pseudo-aléatoires soient limités à 16 bits. Les traces de l'oscilloscope sont par la suite téléchargées sur le PC de Bob via le réseau Ethernet. Un traitement informatique simple permet d'extraire le temps d'arrivée de chaque photon, ainsi que sa base et sa valeur.

[4] D'après A. Einstein, repris par John Rarity pour décrire ce montage

L'horloge interne de l'oscilloscope est suffisamment précise pendant le temps d'acquisition, et il n'y a pas besoin d'une horloge externe stable comme dans le cas d'Alice.

6.4.2 Caractéristiques du montage récepteur

6.4.2.1 Caractéristiques optiques

Dans un premier temps, nous allons caractériser le montage en remplacant le télescope par un laser He-Ne ($\lambda = 633$ nm).

- La transmission de la lame séparatrice est de 50.6%.
- La transmission de la lame achromatique $\lambda/4$ est de 90%
- La transmission totale du système depuis le télescope est d'environ 42% pour chaque voie, en incluant la lame $50/50$
- Le taux d'erreur par bit et par base est d'environ 1%.

Bien que la longueur d'onde d'un laser He-Ne soit décalée d'environ 60 nm du maximum d'émission du centre NV, ces résultats sont une bonne indication des performances du récepteur.

Au taux d'erreur optique, il faut ajouter le taux d'erreur introduit par les coups d'obscurité des PDA ainsi que par la lumière ambiante. Les taux mesurés (dans les conditions expérimentales décrites dans la prochaine section) sont $(d_H, d_V, d_G, d_D) = (150, 180, 380, 160)$ photons par seconde. Nous avons pris soin d'éliminer méticuleusement toute lumière parasite qui pourrait augmenter le taux d'obscurité. De plus, seuls les photons arrivant dans une fenêtre temporelle de 50 ns suivant le signal de synchronisation sont pris en compte. Ainsi on détecte $\eta_g = 90\%$ des photons uniques émis par le centre NV (durée de vie ≈ 23 ns) mais on ne comptabilise que $\beta_g = 27\%$ des coups d'obscurité totaux.

6.5 Distribution de clé quantique avec une source de photons uniques

6.5.1 Disposition et mesures préliminaires

Nous avons installé Alice et Bob à une distance de 15 m pour des mesures préliminaires, puis à 50 m dans un couloir de l'Institut d'Optique. Pour minimiser le taux d'erreur dû au bruit ambiant, les expériences se déroulent dans l'obscurité. L'image 6.9 montre Alice (premier plan) et Bob à une distance de 15 m dans le couloir à l'Institut d'Optique.

6.5.1.1 Alignement

La lumière émise par le centre NV étant trop ténue pour procéder à l'alignement du faisceau, on remplace alors l'échantillon de diamant par un miroir. La lumière d'excitation y est réfléchie, puis emprunte le même chemin que la lumière de fluorescence à travers le microscope confocal, le modulateur électro-optique, et le montage de Bob. On peut ainsi faire simplement les alignements.

Figure 6.9: *Alice et Bob dans le couloir*

6.5.1.2 Caractérisation

Dans cette disposition, nous pouvons estimer une borne inférieure du taux d'erreur. Pour cela Alice code une par une les quatre tensions sur le modulateur électro-optique, et l'on mesure le taux d'erreur au niveau de Bob. Nous obtenons ainsi en utilisant la source de photons uniques:

Base d'analyse	Taux d'erreur
Base H-V	$p_{\mathrm{pol}}^{\mathrm{HV}} = 1.2\%$
Base D-G	$p_{\mathrm{pol}}^{\mathrm{DG}} = 3.2\%$
Moyenne	$p_{\mathrm{pol}} = 2.2\%$

La légère différence provient de l'imperfection de la lame achromatique dans la base circulaire. Cette estimation du taux d'erreur de polarisation tient aussi compte des erreurs de codage du modulateur électro-optique, ainsi que de la compensation imparfaite. Cependant, le taux d'erreur est très proche du taux d'erreur minimal mesuré avec le laser He-Ne.

A cela il faut ajouter le taux d'erreur dû aux coups d'obscurité et à la lumière parasite. Le nombre de photons détectés par Bob est d'environ $N_D^{(b)} = 39300s^{-1}$ sur les quatre photodiodes. Le taux d'erreur p_{dark} vaut donc $p_{\mathrm{dark}} = \beta_g \sum_{i=H,V,L,R} d_i/(\eta_g N_D^{(b)}) = 0.7\%$. Nous pouvons estimer une borne inférieure du taux d'erreur quantique total (QBER : Quantum Bit Error Rate)

$$Q_b^{err} = (p_{\mathrm{dark}} + p_{\mathrm{pol}}^{\mathrm{HV}} + p_{\mathrm{pol}}^{\mathrm{LR}})/2 = 2.6\% \tag{6.8}$$

Remarque : Dans la mesure du taux d'erreur quantique, nous ne devons prendre en compte les taux d'obscurité qu'une fois sur deux, puisqu'ils ne sont comptabilisé que s'ils "arrivent" dans la même base que celle choisie par Alice.

6.5.2 Expérience de cryptographie quantique

L'expérience de cryptographie quantique se déroule en cinq phases :

Communication quantique : Un signal de synchronisation généré par Alice est envoyé à l'aide d'un cable coaxial[5] à Bob qui déclenche une acquisition de 10 ms simultanément sur les quatre voies de détection. Il enregistre les instants d'arrivée de tous les photons détectés.

Post sélection : Bob récupère les données sur son ordinateur et effectue une post-sélection avec des fenêtres de 50 ns. Il sélectionne ainsi 90% des photons uniques tout en rejetant 73% du bruit. A la fin il devrait récupérer 88% des impulsions. En parallèle, il note la fenêtre temporelle dans laquelle il a reçu chaque photon.

Annonce des bases : Bob annonce à Alice le moment de détection de chaque photon ainsi que la base choisie. Alice confirme ou non son choix de base. La clé obtenue est appelée "clé filtrée" (sifted key en anglais).

Mesure du taux d'erreur : Alice et Bob comparent une fraction de leur clé pour estimer le taux d'erreur. En pratique, nous vérifions le taux d'erreur sur la totalité de la clé, afin d'éliminer les fluctuations statistiques (le nombre de bits reçus lors d'une séquence étant relativement faible). Par contre, lorsqu'on utilisera le programme QuCrypt pour effectuer la correction d'erreur, on demandera au programme de ne révéler qu'une partie de la clé.

Correction d'erreur et amplification de confidentialité : Finalement Alice et Bob corrigent les erreurs dans la clé filtrée, puis appliquent l'amplification de confidentialité pour extraire la clé secrète.

Nous avons effectué trois expériences sur une distance de 50 m et 6 sur 10 m. Le tableau 6.3 résume les résultats que nous avons obtenus pour 50 m.

Run	Photons détectés	Photons dans fenêtres	%	Bits filtrés	%	Bits erronnés	%
1	410	328	80	171	52	9	5.2
2	368	279	76	153	55	6	3.9
3	402	293	72	149	51	7	4.6
Moyenne ($10ms$)	393	300	76	157.6	52	7.3	4.6

Tableau 6.3: *Résultats de la distribution de clé quantique sur* 50 *m*

Le nombre total de photons détectés par Bob est de 39300 par seconde. Il en reste 30000 après la post-sélection (réduction des coups d'obscurité), et finalement le taux brut échangé entre Alice et Bob est de l'ordre de 15 kbits / sec avant correction des erreurs.

Le taux d'erreur total sur les trois run est de $Q_b^{err} = 4.6\% \pm 1\%$. Pour minimiser les fluctuations statistiques, nous avons mesuré le taux d'erreur en concaténant les trois clés. Les mesures sur une distance de 10 m avaient donné un taux d'erreur de 4.68%, très proche du taux d'erreur mesuré sur 50 m. L'écart entre la valeur de $Q_b^{err} = 4.6\%$ réellement obtenue et celle estimée dans la section 6.5.1 $(Q_b^{err})^{esti} = 2.6\%$ provient essentiellement du fait que l'estimation ne prend pas en compte la dynamique du modulateur électro-optique et du commutateur CHTHF.

[5] Nous avons choisi un cable coaxial pour des raisons de simplicité. Il serait assez simple de modifier le montage et d'envoyer une impulsion optique

Remarque : Plusieurs problèmes techniques ont limité le nombre d'expériences réalisées, le principal étant l'absence d'automatisation des transferts entre l'oscilloscope à 4 voies qui enregistrait tous les photons détectés par Bob, et l'ordinateur qui stockait et traitait les données. Il serait facile de remplacer l'oscilloscope par une carte d'entrée sortie digitale pour éliminer tous ces problèmes, et avoir une transmission en temps réel d'une clé quantique. Ce dispositif sera prochainement mis en place, mais n'avait pas été implémenté dans le prototype présenté ici.

6.5.3 Correction d'erreurs et amplification de confidentialité.

La correction d'erreurs et l'amplification de confidentialité ont été réalisées à l'aide du programme **QuCrypt** créé par Louis Salvail [111]. Il fait partie du domaine public et le code source est accessible. Il est composé de quatre modules indépendants qui gèrent la communication par le canal quantique ainsi que le canal classique. La communication entre les modules se fait par le protocole standard TCP / IP. Les modules peuvent tourner indifféremment sur un seul ordinateur, ou sur des ordinateurs séparés.

6.5.3.1 Interface avec notre expérience

Dans la version préliminaire de l'expérience de cryptographie que nous avons réalisée, le traitement des données pour notre expérience de cryptographie se fait essentiellement "off line". La limitation matérielle et les contraintes d'utilisation de l'oscilloscope ne nous permettent pas d'avoir un échange de clé en temps réel.

Ainsi nous disposons, après les trois run, d'un fichier pour Alice et Bob contenant les 473 bits après réconciliation des bases (voir section 6.5.2). Pour implémenter QuCrypt, nous avons écrit un programme qui se substitue au canal quantique. Il permet de charger dans QuCrypt la clé filtrée de Alice et Bob, en les transmettant au module correspondant.

6.5.3.2 Correction d'erreurs

La clé filtrée d'Alice et Bob contient typiquement entre 3 et 5% d'erreurs. Cette valeur est beaucoup trop importante pour être acceptable pour une application cryptographique. Il faut donc corriger les erreurs introduites en révélant le moins possible d'information à Eve. Pour cela, Alice et Bob s'échangent la parité de blocs découpés dans la clé originale.

Le théorème de Shannon [112] donne le nombre de bit de parité $N^{Shannon}$ que doivent s'échanger Alice et Bob pour corriger toutes les erreurs introduites pour une clé de taille n.

$$\frac{N^{Shannon}}{n} = -elog_2e - (1-e)log_2(1-e) \tag{6.9}$$

où e est le taux d'erreur. En réalité le nombre de bits de parité dépend de l'algorithme utilisé. Pour les algorithmes existants actuellement et pour des taux d'erreurs inférieurs à 5% , il faut le multiplier par $f[e] \approx 1.16$ [13].

Une fois la clé chargée dans QuCrypt pour chacun des modules (Alice et Bob), le protocole de correction d'erreurs est lancé en appliquant l'algorithme CASCADE. Il consiste en un échange interactif de bits de parité par bloc. La taille du bloc initial est choisie par la formule $k_0 = 1/e + 1/(4e)$, ou e est le taux d'erreur estimé publiquement. Il est obtenu en révélant une partie de la clé, qui a été empiriquement fixé à 10%. La taille du bloc $i+1$ est définie par $k_{i+1} = 2k_i$. Le protocole s'arrête d'incrémenter la taille des blocs lorsque ceux-ci ont une taille supérieure à $1/4$ de la clé totale. Ceci

correspond au passage $i-2$. On effectue ensuite encore deux passages pour vérifier que toutes les erreurs ont bien été corrigées.

6.5.3.3 Amplification de confidentialité

La phase de correction d'erreur a dévoilé de l'information à l'espion. Pendant cette phase Alice et Bob ont échangé k bits pour estimer le taux d'erreur, l bits de parité pour la correction d'erreur, et finalement t bits de confirmation, ce qui correspond à $n_c = k + l + t$ bits révélés pour corriger les erreurs. Par ailleurs, Eve a pu prendre connaissance de n_a bits en attaquant le canal quantique pendant la transmission des photons. Il faut ainsi procéder à l'amplification de confidentialité pour distiller une clé plus petite, mais dont Eve n'a aucune connaissance. Cela est obtenu en choisissant au hasard une fonction de hachage de $\{0,1\}^n \rightarrow \{0,1\}^{n-n_c-n_a-s}$. Alice et Bob obtiennent ainsi une clé contenant n_c+n_a+s moins de bits. Le nombre s correspond à un paramètre de sécurité qui réduit encore la connaissance qu'Eve aura de la clé finale, aux dépends bien sûr de la taille de cette clé; ce paramètre est ajustable au gré de l'utilisateur, et dans la suite nous prendrons simplement $s = 0$.

6.5.3.4 Exemple de mise en oeuvre

Pour fonctionner correctement, l'algorithme de correction d'erreurs doit évaluer le taux d'erreur en sacrifiant une fraction de la clé. Cette évaluation est très efficace lorsque le nombre total de bits échangés est très grand, car le taux d'erreur peut être évalué avec une grande précision sur un échantillon contenant un grand nombre de bits, mais de taille très petite en valeur relative. Par contre, lorsque le nombre total de bits échangés est faible, la fraction à sacrifier devient grande en valeur relative, ce qui est à priori défavorable. De plus, l'algorithme Cascade "consomme" un nombre de bits bien supérieur à la valeur asymptotique donnée par l'éq. 6.9.

A titre d'exemple, nous indiquons ici le déroulement d'une réconciliation des 473 bits contenant 22 erreurs du tableau 6.3, en évaluant le taux d'erreur sur 10% des bits choisis aléatoirement par l'algorithme :

- Taux d'erreur estimé : 2.1% (cette estimation est faussée par la petite taille de l'échantillon)
- Le taille du bloc initial : $k_0 = 33$
- Le nombre de passages : 6

Passage	Erreurs corrigées	Taille bloc	Bits de parité révélés
0	5	33	38
1	12	66	74
2	4	132	27
3	0	132	4
4	0	132	4
5	0	132	4

Tableau 6.4: *Résultats de l'algorithme cascade*

L'algorithme a ainsi corrigé un total de 21 erreurs en révélant 151 bits de parité. La réconciliation a produit une clé identique pour Alice et Bob avec une probabilité de 0.999023. Toutes les erreurs ont été corrigées (il y avait 22 erreurs, mais un bit erronné a fait partie des 10% utilisés pour l'estimation).

Cet exemple appelle plusieurs commentaires. Tout d'abord, l'algorithme consomme plus de bits que ce qui est prévu théoriquement. En effet la formule 6.9 indique que le nombre de bits de parité à révéler doit être de $n_{rev,th} = 133$ avec $f[e] = 1.16$, alors qu'expérimentalement on a $n_{rev,exp} = 151$. De plus, si on relance l'exécution du programme, le taux d'erreur sera évalué sur un autre échantillon, et $n_{rev,exp}$ sera en général différent (voir figure 6.10 ci-dessous). Ces observations confirment donc que le nombre total de bits utilisés est trop faible pour assurer un bon fonctionnement de Cascade. On peut néanmoins évaluer notre dispositif en corrigeant les effets dus à la petite taille de la clé; nous reviendrons sur ce point à la fin de ce chapitre.

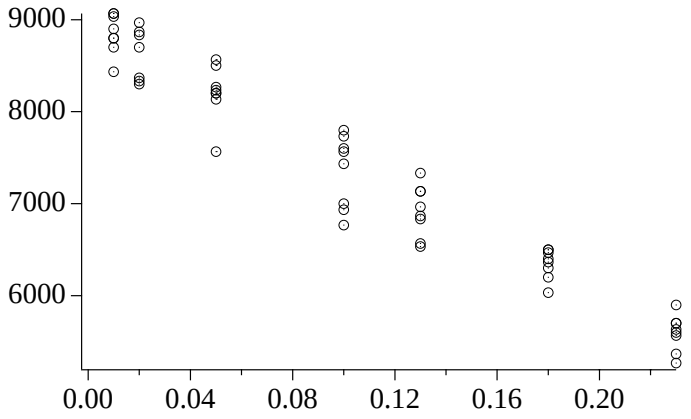


Figure 6.10: *Taux de bits secrets par seconde en fonction du paramètre PA.*

Pour réaliser pratiquement l'amplification de la confidentialité, on introduit dans le programme QuCrypt un paramètre PA donné par par $PA \times (n - k) = n_a$, où n_a est le nombre de bits connus d'Eve suite à son attaque du canal quantique. Sur la figure 6.10 on a reporté le taux de bits secrets en fonction de PA. Pour chaque valeur de PA, nous avons reporté le taux de bits secrets obtenus par 8 exécutions indépendantes du programme : on voit donc apparaître directement les "fluctuations d'efficacité" de Cascade citées dans le paragraphe précédent, et dues à la trop petite taille de l'échantillon.

Nous montrerons ci-dessous que la valeur PA=0.23 correspond à la connaissance acquise par Eve si elle possède "tous les pouvoirs" autorisés par la mécanique quantique. Dans ce cas, Alice et Bob partagent 176 bits secrets à partir des 473 bits initialement échangés. Avant de conclure sur l'analyse de ces résultats expérimentaux, nous allons examiner plus en détail l'évaluation de PA, qui est directement fonction du type d'attaque qu'Eve peut effectuer sur le canal quantique.

6.6 Etude théorique de la sécurité

Dans cette section, nous voulons obtenir une formule qui donne le nombre de bits secrets par seconde qu'Alice et Bob peuvent s'échanger, ainsi que la distance maximale à laquelle une communication secrète est possible. Ces deux paramètres vont largement dépendre de la nature de la source utilisée dans le canal quantique. Les calculs de cette section utilisent les formules établies dans [13, 113], et n'ont pas pour but de re-démontrer les résultats.

Avant d'entreprendre l'étude de la sécurité, nous allons donner un bref aperçu des attaques que peut effectuer l'espion, ainsi que des outils dont il dispose.

Nous allons considérer ici qu'Eve peut utiliser toute la technologie théoriquement accessible. Il peut paraître que les conditions que nous allons énumérer sont excessives, et qu'elle sont loin d'être expérimentalement réalisées. Néanmoins, cette approche basée sur l'idée de la "sécurité inconditionnelle" est utile pour montrer les avantages de notre prototype de cryptographie à photon uniques par rapport aux source cohérentes atténuées (Weak Coherent Pulse WCP). Par contre, on limite les attaques d'Eve aux lignes de transmission (aussi bien classiques que quantiques). Les attaques à l'intérieur des appareils d'Alice et Bob ne sont pas prises en compte. Ainsi les outils que possède Eve sont :

- **Mesure QND parfaite :** Eve est capable de mesurer le nombre de photons qu'il y a dans une impulsion, sans en perturber l'état de polarisation. Ceci est un défi technologique, car même si les mesures QND [114] sont très efficaces, elles n'ont jamais été réalisées pour un seul photon en optique. Néanmoins des progrès ont été réalisés dans le domaine des micro-ondes [115].

- **Mémoires quantiques :** Eve peut stocker aussi longtemps qu'elle le souhaite un photon sans le perturber. Pour cela elle recopie l'état du photon sur un autre système quantique, par exemple un atome dans une cavité. Dans les meilleures réalisations actuelles de telles mémoires ont une durée de vie très faible (ms) et un taux d'erreur très élevé.

- **Fibres optique sans pertes, ou téléportation parfaite :** Eve est capable de transporter un photon d'un endroit à un autre sans pertes. Il semble que même théoriquement, une fibre optique sans pertes est irréalisable, mais Eve peut effectuer une téléportation parfaite du photon intercepté. Actuellement la fidélité de la téléportation est d'environ $F \approx 0.83$ [116]. Beaucoup de progrès doivent encore être réalisés.

- **Etat de Fock arbitraire :** On suppose aussi qu'Eve possède une source de photons avec laquelle elle peut recréer n'importe quel état de Fock. Diverses études avec des atomes piégés dans des microcavités montrent qu'il est envisageable de générer un état de Fock arbitraire [117, 118].

- **Canal classique :** En plus des attaques sur le canal quantique, Eve a accès au canal classique mais ne peut personnifier ni Alice ni Bob. On considère qu'Alice et Bob se sont échangés préalablement une clé secrète qui leur sert d'authentification. Si le canal classique est crypté par les méthodes algorithmiques actuelles, on suppose qu'Eve connait des algorithmes très puissants ou possède un ordinteur quantique, ce qui lui permettent de casser le code.

6.6.1 Tactiques d'attaque

Nous allons maintenant décrire quelques attaques qu'Eve peut effectuer sur la ligne de communication quantique. Nous allons commencer par l'attaque d'Eve sur les photons uniques, puis décrire deux attaques sur les impulsions contenant plusieurs photons, l'une d'elles étant technologiquement possible actuellement.

6.6.1.1 Attaque des simples

Pour attaquer les impulsions contenant un seul photon, Eve doit faire une mesure, puis renvoyer vers Bob un photon codé avec le résultat de sa mesure[6] [111, 9]. Pour cela Eve choisit aléatoirement

[6] Cette attaque est couramment appelé Intercept-Resend dans la littérature

une base (H-V ou D-G), et il est facile à voir que dans 75% des cas elle aura deviné de façon exacte la valeur du bit qu'Alice a envoyé, mais que dans 25% des cas, la valeur du bit partagée par Alice et Bob sera fausse.

Une attaque plus fine[7] consiste à utiliser la base de Breidbart [119] orientée à 22.5^o par rapport aux bases d'Alice et Bob. Dans ce cas, Eve devinera correctement avec une probabilité de $cos^2(\pi/8) \approx 0.85$. Elle n'introduira que 15% d'erreur.

Cette attaque est très facilement réalisable par Eve. Il lui suffit d'avoir une source de photons uniques ainsi que le même montage que Bob (ou bien une version améliorée). Mais, lors de cette attaque, elle révèle sa présence à cause des erreurs qu'elle introduit dans la transmission. On peut ainsi évaluer une limite supérieure sur le taux d'erreur admissible pour la cryptographie quantique. En effet, si le taux d'erreur est supérieur à 15% alors Alice et Bob savent qu'un espion a écouté une grande partie de la communication, et qu'aucune clé secrète ne peut être déduite. Si le taux d'erreur est inférieur à 15% ils peuvent distiller une clé secrète par correction d'erreur et amplification de confidentialité. Le protocole BB84 laisse peu de marge de manoeuvre à Eve. En fait, elle préférera attaquer les impulsions contenant plusieurs photons.

6.6.1.2 Attaque des doubles

Supposons qu'Alice possède une source qui émet N_1 impulsions contenant un seul photon et N_2 impulsions contenant plus de deux photons. Bob détectera alors N_{b1} simples et N_{b2} doubles, mais il ne peut pas distinguer les impulsions simples des impulsions doubles. On se place dans le cas ou les pertes sont très élevées et donc $N_{b2} \ll N_{b1} + N_{b2}$. Alors si $N_{b1} = N_2$ l'attaque est la suivante :

- Eve se place juste à la sortie des locaux d'Alice.
- Pour chaque impulsion, elle effectue une mesure QND du nombre de photons. S'il n'y a qu'un seul photon dans l'impulsion, alors elle la bloque. Sinon elle sépare les photons de l'impulsion pour n'en garder qu'un seul, qu'elle place dans une mémoire quantique.
- Par le biais d'une fibre sans perte, ou bien d'un téléporteur quantique, elle transfère le deuxième photon chez Bob. Bob recevra alors le même nombre d'impulsions et ne se rendra compte de rien. Pour déjouer ce type d'attaque, Bob peut analyser la statistique des impulsions, et s'assurer que la probabilité d'avoir 2 ou 3 photons par impulsion est conforme à celle attendue. Eve doit alors s'adapter et "créer" des impulsions avec un nombre de photons donné, afin de garder la statistique de Bob inchangée [120, 121, 122].
- Une fois qu'Alice et Bob auront révélé leur base, Eve va mesurer dans la bonne base le photon qu'elle a gardé dans la mémoire.

Ainsi, Eve est en possession de toute l'information qu'Alice et Bob ont échangée, sans introduire d'erreurs, et donc sans révéler sa présence. Ceci nous donne une deuxième limite sur le taux de pertes tolérable dans un système de cryptographie quantique pour un nombre moyen d'impulsions contenant deux photons. Ainsi pour une source cohérente atténuée, la limite est donnée par $p(2) = p(1)^2/2 = \eta p(1)$, où η décrit les pertes de la liaison Alice-Bob. Pour un nombre moyen de photon par impulsion $p(1) = 0.1$ ceci équivaut à des pertes maximales de 13 dB.

Bien sûr, Eve peut utiliser aussi cette attaque pour des pertes plus faibles. Dans ce cas elle ne récupère qu'une partie de l'information.

[7] Cette attaque existe dans le cas ou la polarisation est codée sur la base $|H\rangle$ $|V\rangle$ $|45\rangle$ $|135\rangle$. Une version similaire existe pour notre codage

6.6.1.3 Attaque des triples

L'attaque sur les impulsions à deux photons demande des capacités technologiques importantes qui sont encore loin d'être réalisées expérimentalement. Par contre si les pertes sont importantes, Eve peut choisir de s'attaquer aux impulsions contenant trois photons. Une telle attaque est possible avec la technologie actuelle.

Le dispositif expérimental de l'espion est exactement le même que celui de notre récepteur décrit dans la figure 6.8, constitué de 4 PDA correspondant aux 4 états de polarisation. On suppose qu'Eve se place de nouveau juste à la sortie d'Alice et qu'elle est en possession d'une source de photons uniques.

- Pour chaque impulsion elle regarde le nombre de photodiodes qui ont enregistré un évènement. Si elle détecte un évènement sur 3 des 4 photodiodes à avalanche, alors, elle peut déterminer de façon non-ambigüe, la polarisation des photons.
- Au niveau de Bob elle place une source de photons uniques, et envoie à Bob un seul photon avec la polarisation qu'elle a mesurée.
- Si moins de 3 photodiodes enregistrent un évènement alors elle ne fait rien.

Cette attaque est simple à mettre en œuvre, et ne nécessite pas de nouvelles technologies. Pour une source cohérente atténuée, la probabilité d'avoir 3 photons dans l'impulsion est donnée par $p(3) = p(1)^3/6$. Dans le cas décrit ici, compte tenu du dispositif expérimental, Eve aura $p(1)^3/16$ évènements où elle est capable de déterminer de façon non ambigüe la polarisation du photon. Lorsque le nombre d'évènements triple au niveau d'Alice est égal au nombre d'évènements simple chez Bob $p(1)^3/16 = \eta p(1)$, alors Eve peut tromper l'adversaire. Il en découle une condition sur la probabilité $p(1)$ pour une source cohérente atténuée, en fonction des pertes de la ligne.

- Pour des pertes de 20dB, $p(1) < 0.4$
- Pour des pertes de 30dB, $p(1) < 0.13$

Ainsi pour des canaux de communication avec de grande pertes, les source cohérentes atténuées sont peu adaptées.

6.6.2 Pertes maximales et taux de bits sûrs

En fonction de l'attaque qu'Eve va pouvoir faire sur le canal quantique, nous pouvons déduire le taux maximal de pertes tolérées pour avoir une communication sécurisée. Pour cela nous allons dériver le taux de bits sûrs par impulsion après correction d'erreurs et amplification de confidentialité. Comme nous l'avons vu plus haut, la correction d'erreur conduit au sacrifice d'un certain nombre de bits en fonction du taux d'erreur donnée par la formule de Shannon (eq. 6.9). Le taux de bits qu'il faut sacrifier pendant l'amplification de confidentialité va dépendre du type d'attaque que fera Eve.

6.6.2.1 Attaque sur les simples seulement.

Eve peut se contenter de n'attaquer que les impulsions contenant un photon. Dans ce cas, le taux de bits à sacrifier, pour l'amplification de confidentialité, est donné par la formule $ln_2(1 + 4e - 4e^2)$ [13] en fonction du QBER e. Ainsi le taux de bits sûrs, après correction d'erreur et amplification de confidentialité, s'écrit

$$G^{simples} = \frac{1}{2} p_{exp} \left(1 - ln_2(1 + 4e - 4e^2) + elog_2 e + (1-e)log_2(1-e)\right) \tag{6.10}$$

où p_{exp} le nombre de photons que détecte Bob. Prenons le cas idéal ou $p_{exp} = 1$. On peut ainsi mesurer le taux d'erreur maximal toléré dans le cadre de la cryptographie quantique. La valeur de $G^{simples}$ donnée par l'équation 6.10 est nulle pour un taux d'erreur égal à $e \approx 0.11$. Il est impossible à Alice et Bob de s'échanger une clé secrète s'ils mesurent un taux d'erreur supérieur à 11%. Le nombre de bit sacrifiés est égal à la taille de la clé échangée.

6.6.2.2 Formule de gain pour un système réel

Un espion tout-puissant va aussi attaquer les impulsions contenant plusieurs photons. Dans ce cas, on suppose qu'Eve peut extraire toute l'information des impulsions à plusieurs photons, et ceci sans révéler sa présence (voir discussion au-dessus).

On peut dériver la formule qui donne le nombre de bits sûrs par impulsion dans des conditions réelles (G^{multi}). Elle est donnée par [13] :

$$\begin{gathered} G^{multi} = \frac{1}{2} p_{exp} \times \\ \left\{ \frac{p_{exp} - S_m}{p_{exp}} \times \left(1 - log_2 \left[1 + 4e \frac{p_{exp}}{p_{exp} - S_m} - 4 \left(e \frac{p_{exp}}{p_{exp} - S_m} \right)^2 \right] \right) \right. \\ \left. + f[e][elog_2 e + (1-e)log_2(1-e)] \right\} \end{gathered} \tag{6.11}$$

où S_m et le taux d'impulsions contenant au moins deux photons. La probabilité p_{exp} que Bob détecte un signal a deux composantes. La première provient de la détection des photons p_{exp}^{signal} envoyés par Alice, et la deuxième des coups d'obscurité des détecteurs par fenêtre de détection p_{exp}^{dark}. Ainsi on obtient :

$$p_{exp} = p_{exp}^{signal} + p_{exp}^{dark} - p_{exp}^{signal} p_{exp}^{dark} \tag{6.12}$$

De même le taux d'erreur e a deux contributions. L'imperfection du montage de détection, ainsi que les erreurs de codage de la polarisation, vont avoir un effet sur le taux d'extinction dans chacune des bases. Ce taux d'erreur est constant et proportionnel à p_{exp}^{signal}, et le facteur de proportionnalité est nommé c. Dans notre cas nous obtenons (c) en soustrayant le taux d'erreur dû au taux d'obscurité au QBER mesuré expérimentalement, soit $c = 0.046 - 0.007 = 0.039$. Le taux d'obscurité a aussi une contribution non négligeable. En effet si un coup d'obscurité arrive pendant une fenêtre de détection, il sera interprété aléatoirement comme un des deux résultats possibles (bit 0 ou bit 1) pour Bob, ce qui introduit 50 % d'erreur. Ainsi le taux d'erreur dans la clé filtrée est modélisé par :

$$e \approx \frac{c p_{exp}^{signal} + \frac{1}{2} p_{exp}^{dark}}{p_{exp}} \tag{6.13}$$

On peut tout de suite remarquer que lorsque $p_{exp}^{signal} \approx p_{exp}^{dark}$ alors le taux d'erreur $e \approx \frac{2c+1}{4} > 0.11 \; \forall c$. Aucune communication secrète ne peut être établie. Ainsi un des facteurs limitant pour la cryptographie à grande distance va être le taux d'obscurité par fenêtre temporelle des détecteurs.

Pour les PDA en silicium le taux d'obscurité est approximativement 150 cps, tandis que pour les détecteurs InGaS, utilisés pour les longueurs d'onde telecom de 1.3μm et 1.5μm, le taux d'obscurité est compris entre 10^3 et 10^4 cps. Dans notre cas nous utilisons des fenêtres de 50 ns, tandis que les prototypes basées sur des sources cohérentes atténuées utilisent des fenêtres de 2 ns [95]. Ils seront donc moins sensibles aux coups d'obscurité.

Il faut maintenant estimer p_{exp}^{signal} ainsi que S_m qui est la contribution des impulsions contenant deux photons. Pour cela nous allons considérer que la source de photons d'Alice à une distribution poissonnienne du nombre de photons, avec une valeur moyenne μ d'où :

$$S_m^{WCP} = 1 - (1+\mu)exp(-\mu) \tag{6.14}$$

$$p_{exp}^{signal} = 1 - exp(-\eta_B \eta_T \mu) \tag{6.15}$$

Il est important de noter que le facteur S_m est le taux d'impulsions contenant plusieurs photons à la sortie de l'émetteur d'Alice. Dans le cas de notre source à photons uniques $S_m^{SPP} = C(0)S_m^{WCP}$, où $C(0)$ est l'aire du pic à temps nul de la fonction d'autocorrélation (voir fig. 6.7). Dans l'expression de p_{exp}^{signal}, le terme η_B représente l'efficacité de détection de Bob. La transmission (η_T) entre Alice et Bob est exprimée en fonction de α (coefficient de pertes en dB / km) et l (distance en km) :

$$\eta_T = 10^{-\frac{\alpha l}{10}} \tag{6.16}$$

6.6.2.3 Comparaison

Afin de comparer un système de cryptographie quantique à photons uniques avec un système basé sur une source cohérente atténuée, on considère le même montage expérimental dans les deux cas, en ajustant les paramètres propres à chaque source. Les paramètres sont résumés dans le tableau 6.5.

	Source photons uniques	Source cohérente atténuée
α	0.25dB / km	0.25dB / km
Coups d'obscurité	150 s^{-1}	150 s^{-1}
c	0.039	0.039
η_B	-2.2dB	-2.2dB
$C(0)$	0.07	1
Fenêtre	50 ns	2 ns

Tableau 6.5: *Paramètres utilisés pour la simulation.*

Remarquons que les résultats dépendent de la distance de propagation l seulement par la valeur des pertes totales en ligne αl exprimées en dB, qui sont indiquées sur l'axe horizontal de la figure 6.11. Les courbes de la fig. 6.11 pourraient aussi bien êtres exprimées en unités arbitraires, sans pour autant changer les conclusions de la comparaison. Les courbes de la fig. 6.11 représentent le taux de bits sûrs par impulsion pour une source de photons uniques et une source cohérente atténuée, calculé à partir des valeurs du tableau 6.5.

Plus les pertes deviennent importantes, plus le nombre de bits "sacrifiés" pour la correction d'erreur et l'amplification de confidentialité devient important. On remarque un net avantage pour notre source de photons uniques avec $\mu = 0.014$, par rapport à une source cohérente de même nombre moyen de photons. L'avantage se creuse encore plus pour un nombre moyen de photons de $\mu = 0.1$

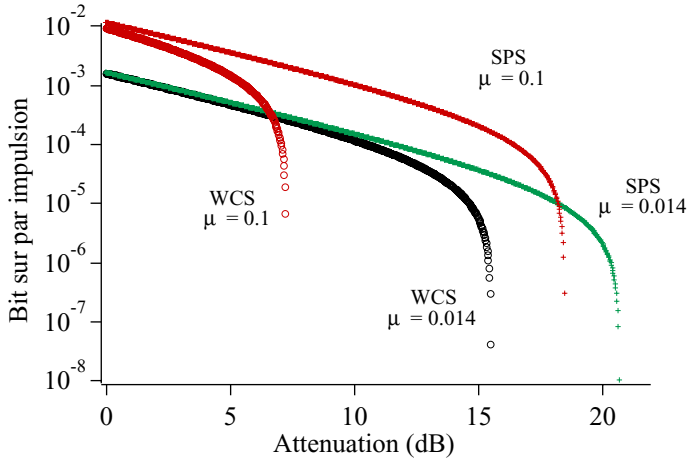


Figure 6.11: *Taux de bit secrets par impulsion pour une source à photons uniques et une source cohérente atténuée. Les courbes représentent deux valeurs différentes du nombre moyen de photons par impulsion.*

6.6.2.4 Pertes maximales autorisées.

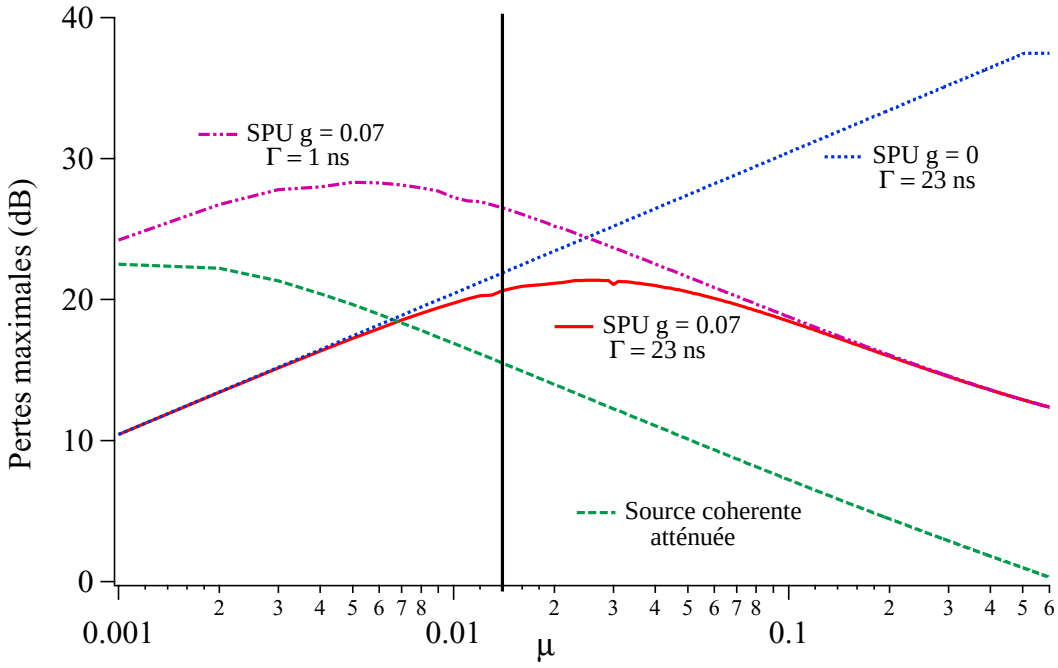


Figure 6.12: *Pertes maximum admissibles pour une communication sûre, en fonction du nombre moyen de photons par impulsion.*

Sur la figure 6.12 nous avons reporté les pertes maximales admissibles pour que la communication reste sûre, en fonction du nombre moyen de photons dans chaque impulsion, en considérant un système basé soit sur une source cohérente atténuée, soit sur une source de photons uniques. Pour tracer la courbe de la figure 6.12, nous avons fixé le seuil de pertes maximale admissibles à $G^{multi} = 10^{-6}$ (voir fig. 6.11). Compte tenu du taux de répétition des sources actuellement utilisées,

ceci correspondrait à un taux de 5 à 10 bits sûrs par seconde.

Sur la figure 6.12, nous avons aussi tracé une courbe pour une source de photons uniques parfaite avec la même fenêtre d'acquisition que notre système (courbe bleue en pointillés), et une courbe pour une source équivalente à la nôtre mais avec une durée de vie de 1 ns (courbe mauve (-..-)) et donc une fenêtre d'acquisition de 2 ns. On remarque clairement que la courbe représentant notre expérience est tangente aux deux autres. A faible μ nous sommes limités par la taille de la fenêtre, tandis qu'à fort μ ce sont les impulsions résiduelles contenant deux photons qui limitent la portée. Ainsi en améliorant la qualité de la source de photons uniques, nous pourrions accepter des pertes plus importantes.

Le système de cryptographie que nous avons mis en place présente un nombre moyen de photons $\mu = 0.014$ (ligne noire). Les pertes maximales admissibles pour garantir une communication secrète sont de $\varsigma^{SPU} = 20.6$ dB pour notre source de photons uniques contre $\varsigma^{WCS} = 15.5$ dB pour un prototype utilisant une source cohérente atténuée. En améliorant l'efficacité de la source de photons uniques, cet avantage devient de plus en plus important. Par exemple, pour la valeur $\mu = 0.05$ qui semble expérimentalement accessible, le taux maximal de pertes est peu modifiée pour la source de photons uniques ($\varsigma^{SPU} = 20.5$ dB), tandis que pour une source cohérente atténuée il n'est plus que de $\varsigma^{WCS} = 10.1$ dB.

6.6.2.5 Avantage en taux de bits sûrs

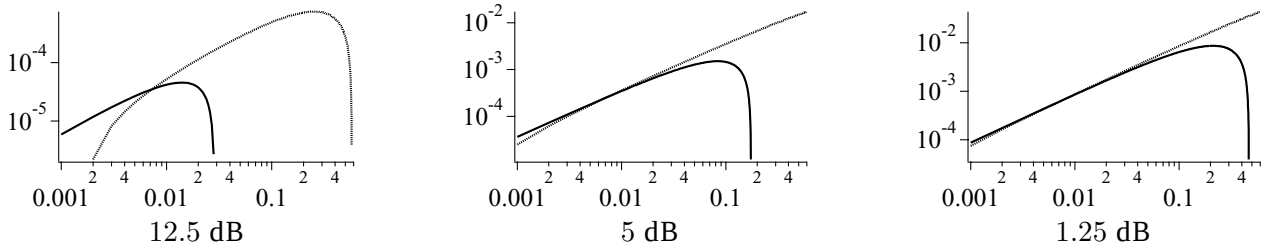


Figure 6.13: *Taux de bits secrets par impulsion pour* $12.5, 5, 1.25$ *dB de pertes en fonction du nombre moyen de photons par impulsion. Les paramètres sont ceux du tableau 6.5. Les pointillés représentent la source de photons uniques, et le trait plein la source cohérente atténuée.*

Nous avons représenté sur la figure 6.13 le taux de bits sûrs par impulsion en fonction du nombre moyen de photons par impulsion pour différentes pertes. Dans la limite de faibles pertes, (1.25 dB) il y a un faible écart entre une source de photons uniques et une source cohérente atténuée. Par contre pour des fortes pertes (> 12.5 dB) et dans la limite où $\mu < 0.03$ (domaine ou les deux sources peuvent être en compétition) les sources à photons uniques présentent un avantage quantitatif sur le taux de bits sûrs.

6.7 Analyse des performances du système réalisé

6.7.1 Confrontation théorie-expérience

Comme nous l'avons vu, la comparaison entre nos résultats expérimentaux actuels et les calculs ci-dessus est compliquée par la petite taille de la clé échangée. Nous allons d'abord donner les résultats attendus théoriquement, puis nous reviendrons sur la comparison théorie-expérience.

Nous pouvons utiliser la formule 6.11 pour évaluer notre expérience, qui est décrite par les paramètres suivants :

$$p_{exp} = 7.4 \times 10^{-3} \times 0.9, S_m = 7 \times 10^{-6}, e = 4.6 \times 10^{-2}$$

où on a tenu compte du fait que seulement 90% des photons sont détectés dans la fenêtre. Rappelons également que la valeur de S_m correspond au nombre d'impulsions doubles quittant la station d'Alice, suivant la discussion effectuée à la section 6.6.1.2.

On obtient ainsi $G^{multi} = 1.68 \times 10^{-3}$. En multipliant par le taux d'excitation de 5.3 MHz, le taux de bits secrets attendus est de 8100 bits sûrs par seconde.

Pour comparer cette valeur au résultat obtenu avec QuCrypt, nous devons estimer la connaissance d'Eve $n_a = PA(n-k)$, en supposant qu'Eve à tous les pouvoirs autorisés par la mécanique quantique. Le facteur PA est alors donné par [13, 113] :

$$PA = \frac{p_{exp} - S_m}{p_{exp}} \times log_2 \left[1 + 4e\frac{p_{exp}}{p_{exp} - S_m} - 4\left(e\frac{p_{exp}}{p_{exp} - S_m} \right)^2 \right] \tag{6.17}$$

soit $PA = 0.23$ pour les paramètres précédents. Dans le taux d'erreur on inclut aussi bien les erreurs de polarisation que les erreurs dues au taux d'obscurité, car on considère qu'Eve est capable de modifier le taux d'obscurité des détecteurs de Bob. En utilisant le programme QuCrypt nous avons ainsi obtenu 5500 ± 200 bits secrets par seconde (voir figure 6.10). On observe donc un écart significatif entre la valeur théorique et la valeur obtenue expérimentalement. Cette différence est attribuée à la taille finie de la clé échangée, qui oblige à sacrifier une trop grande fraction des bits pour estimer le taux d'erreur (dans notre cas 10% de la clé). De plus, le nombre de bits de parité qui doivent être échangés est plus important que celui prévu théoriquement par l'équation 6.9.

Le tableau ci-dessous décrit les différentes tailles de clé que nous devons obtenir en fonction de la "qualité" de l'algorithme. Ce sont les valeurs prises pour un seul run, à titre de comparaison. On définit le taux de reconciliation $R = (n-l)/n$, qui est donné par QuCrypt indique à chaque exécution du traitement.

	Theoriquement	QuCrypt sans estimation	QuCrypt avec estimation
Bits filtrés	473	473	473
Bits d'estimation	0	0	$474 * 0.1 = 47$
R	0.71	0.62	0.62
Bits de parités	127	178	160
Bits de confirmation	0	0	10
PA =0.23	$474 \times PA = 109$	$474 \times PA = 109$	$427 \times PA = 98$
Total (bit / s)	7930	6200	5300

Le tableau montre clairement que QuCrypt consomme globalement beaucoup trop de bits dans la phase de correction d'erreur. En simulant des tailles de clé plus importantes, il apparaît clairement qu'il suffit de moins de 1% des bits pour estimer le taux d'erreur, et que Cascade s'approche de son efficacité théorique donnée par la formule 6.9. Nous pouvons donc conclure que notre système fournit un taux d'environ 8000 bits secrets par seconde, qui n'a pas été atteint par le programme QuCrypt à cause de la trop petite taille de l'échantillon traité.

00001 10010 01110 01101 11011	11111 10110 00010 10100 00111
11101 00101 11000 00000 00111	10001 01111 11100 01010 11101
11100 11110 10011 00010 00100	00110 10110 00101 01011 00110
00101 10110 01011 11101 01111	0

Tableau 6.6: *Clé secrète partagé entre Alice et Bob*

6.7.2 Clé extraite

Pour conclure, la clé échangée est reprise dans le tableau 6.7.2. Pour coder un message, on regroupe la clé en bloc de 8 bits. Le tableau ASCII[8] fait la correspondance entre une lettre et un chiffre de compris entre 0 et 255 (2^8 valeurs). Alice a ainsi envoyé le message suivant "Cryptographie quantique" en utilisant la clé de chiffrement ci-dessus " o-3"hw*f*pe@c+1*"pY8IN&|% ". Le message ainsi codé correspond à la chaîne " ,@+3\X:BD/K#5J0Ex9}g4I!".

6.8 Perspectives

L'efficacité totale de notre source de photons uniques place notre prototype de cryptographie quantique dans un domaine où l'on observe un petit avantage quantitatif par rapport à un dispositif utilisant une sources cohérente atténuée. Plusieurs améliorations simples pourraient permettre d'augmenter le nombre moyen de photons polarisés par impulsion, ce qui se traduirait immédiatement par une amélioration des performances de notre source.

Premièrement, le taux de transmission du modulateur électro-optique est faible. Il n'est que de $T_{EOM} = 0.65$, et des modulateurs plus récents présentent une transmission plus élevée ($> 90\%$). Deuxièmement, le centre utilisé ici présente un taux de polarisation de 46%, et une bonne partie de la lumière ne traverse donc pas le cube polariseur. Cette valeur peut probablement être améliorée En tenant compte de ces deux effets, on peut penser augmenter le nombre moyen de photons, pour passer de $\mu = 0.014$ à $\mu = 0.027$ soit 143000 photons uniques codés par seconde.

Par ailleurs, nous pouvons placer les nanocristaux de diamant dans une microcavité pour exalter l'émission dans la direction de l'objectif. La microcavité peut aussi réduire la largeur du spectre d'émission, sans diminuer le nombre de photons émis. Ceci permettrait d'utiliser des fenêtres spectrales plus petites, et donc de mieux éliminer la lumière ambiante, tout en diminuant le taux d'erreur du modulateur. Il est raisonnable de penser que nous pouvons améliorer la source et atteindre un nombre moyen de photons de $\mu = 0.08$. Dans ce cas notre système de cryptographie quantique sera très compétitif par rapport aux sources cohérentes atténuées. De plus, on pourrait alors envisager une expérience de cryptographie quantique avec une source de photons uniques en extérieur pendant la nuit. Ceci confirmerait les possibilités de notre système pour des communications longue distance à l'air libre, comme la distribution de clés secrètes par satellite.

[8] Tableau complet sur www.asciitable.com

Conclusion

Au cours de cette thèse nous avons réalisé une source de photons uniques efficace fonctionnant à température ambiante, basée sur la fluorescence de centres NV uniques dans des nanocristaux de diamant. Puis nous avons utilisé cette même source dans un montage de cryptographie quantique.

Pour isoler la fluorescence d'un centre NV unique, nous avons mis en place un microscope confocal. Puis nous avons étudié la lumière de fluorescence avec un montage d'autocorrélation d'intensité. Nous avons étudié la statistique de la lumière émise par un centre NV dans le diamant massif et dans les nanocristaux de diamant. Cette étude a permis de mettre en évidence l'existence d'un niveau métastable, et de quantifier son effet sur le taux de fluorescence. Nous avons aussi étudié l'influence de l'indice du milieu sur la durée de vie de l'état excité.

Dans un deuxième temps, nous avons monté un laser impulsionnel, et nous avons réalisé une source efficace et stable de photons uniques à température ambiante. L'efficacité d'émission a été augmentée de manière significative en déposant les nanocristaux sur un miroir diélectrique, pour rediriger les photons émis vers l'objectif de microscope.

Finalement, en utilisant cette source, nous avons effectué une expérience de cryptographie quantique sur 50 m en échangeant 5860 bits sûrs par seconde. Par des simulations, nous avons montré que notre dispositif a un avantage quantitatif par rapport à un dispositif utilisant une source cohérente atténuée. Cette expérience est à notre connaissance la première expérience de cryptographie quantique réalisée avec des photons uniques.

Plusieurs perspectives restent encore à explorer. Des améliorations dans l'efficacité de collection des photons nous permettraient d'effectuer un échange de clé secrète à plus grande cadence. De plus en réduisant le spectre nous pourrions effectuer une expérience de distribution de clé quantique à l'extérieur la nuit. Pour cela on envisage de placer les nanocristaux de diamant à l'intérieur de microcavités; ces expériences sont actuellement en cours de mise au point.

Il serait aussi intéressant d'étudier la fonction de corrélation d'un centre NV en polarisation, en plaçant un cube polariseur devant chacune des photodiodes, et en étudiant le taux de coïncidences en fonction de l'angle entre les deux cubes. Ceci peut permettre de mettre en évidence un éventuel pompage optique vers les sous-niveaux Zeeman du triplet du fondamental. L'existence de ces sous niveaux peut permettre d'intriquer deux centres NV suivant la proposition [123]. Ces expériences nécessitent néanmoins de refroidir les centres NV à 4 K, afin d'augmenter le temps de cohérence.

Enfin, pour diminuer le taux d'impulsions ne contenant aucun photon, on peut envisager de placer une photodiode à avalanche qui collecte les photons réfléchis par le cube polariseur de la figure 5.19. Alice et Bob pourraient utiliser cette information pour exclure une partie des coups d'obscurité détectés par Bob. Parallèlement le taux de photons collecté par la photodiode pourrait être utilisé pour l'asservissement du faisceau d'excitation sur le centre NV.

Parallèlement à notre travail, d'autres sources de photons uniques ont été réalisées avec succès

par différents groupe de recherche. Nous allons donc terminer cette thèse par une brève revue de l'état de l'art dans ce domaine.

En ce qui concerne les systèmes basés sur des molécules uniques, la molécule de térylène dans un cristal de para-terphényl fut la première à être étudiée à température ambiante. Elle est photostable sur plusieurs minutes lorsqu'elle est à l'intérieur d'un cristal épais. Deux expériences en excitation continue [124] et impulsionnelle [125], toutes deux réalisées durant l'année 2000 ont démontré le dégroupement de photons et la production d'une source de photons uniques à température ambiante. Cependant, l'épaisseur du cristal (quelques μm) ne permet pas d'envisager l'insertion des molécules dans des microcavités pour exalter la fluorescence. La dernière expérience en date montre par ailleurs que la photostabilité de la molécule ne dépend pas fortement de l'hôte, puisque le signal de dégroupement a été aussi observé dans des films de PMMA [126] (en 2001) (polyméthyl métacrylate).

Une autre source de photons uniques efficace a été réalisée par le même groupe, en utilisant cette fois des molécules de cyanine dans du PPMA [127]. Outre la mise en place d'une source de photons uniques et la mesure du facteur de Mandel de la distribution des photons émis, il a été observé que le processus de photoblanchiment est fortement lié à la forme de l'impulsion d'excitation, ainsi qu'à sa durée [128]. Il semble donc que la question de la photostabilité des molécules à température ambiante n'a pas encore reçu une réponse complètement définitive.

Les boîtes quantiques de InAs ont eu un grand succès pour réaliser des sources de photons uniques "à la demande". Plusieurs groupes ont mis en évidence le phénomène de dégroupement (en 2001) [129, 130] , et réalisé une source impulsionnelle de photons uniques [88, 131, 132] (en 2000-2001). On peut aussi noter que les boîtes quantiques sont de bons candidats pour créer des photons uniques dont la largeur spectrale est la transformée de Fourier de leur durée de vie. De tels photons pourraient être utilisés pour un ordinateur quantique suivant la proposition de Knill et al. [15].

La dernière expérience en date (2002) montre que deux photons émis par une telle source sont indiscernables [133]. D'autres phénomènes ont aussi été observés, comme les corrélations temporelles, ou les corrélations de polarisation, entre deux photons successifs émis par cascade radiative dans une boîte quantique [134] (2001). Cependant, ces systèmes restent complexes à mettre en œuvre à cause du montage cryogénique. De plus, bien que l'efficacité "à la source" soit en principe élevée grâce aux microcavités utilisées, l'efficacité "pratique" après extraction du cryostat et filtrage spectral demeure pour l'instant assez faible.

Le dégroupement de photons a aussi été observé en 2000 [31] pour des nanocristaux de CdSe, mais pour l'instant aucune expérience en excitation impulsionnelle n'a donné de résultats concluants.

Enfin, une source de photons uniques basée sur le couplage d'un atome unique avec une cavité de grande finesse a été tentée en 2000[135], et a récemment donné des résultats en régime impulsionnel.

Le tableau ci-dessous résume les résultats obtenus fin 2002 :

Système	Temp.	Γ^{-1}	Largeur Spectrale	Dégroupement	Ph. Uniques	Cryptographie
Atomes	N / A	$\approx \mu$s	TF (cavité)	1977	2000	Non
Molecules	Ambiant	≈ 2 ns	dizaines de nm	2000	2000/2001	Non
InGas	4 K	< 1 ns	TF (cavité)	2001	2000/2001	Oui (Decembre 2002)
Centres NV	Ambiant	25 ns	100 nm	2000	2002	Oui ($Octobre 2002$)

Appendice A

Complément sur l'électronique

A.1 Commutateur Haute Tension Haute Fréquence (CHTHF)

Dans le protocole BB84, il faut pouvoir coder quatre polarisations différentes. Nous utilisons pour cela un modulateur électro-optique, dont la mise en œuvre est décrite dans la section 6.3. On code la polarisation en appliquant aléatoirement une tension de $0, 115, 230$ ou 345 V. Pour pouvoir choisir aléatoirement une tension pour chaque photon, à la cadence d'excitation du centre NV qui est de 5.3 MHz, il faut pouvoir basculer de 0 V à 345 V en un temps très court. Sachant que 90% des photons sont émis dans une fenêtre de 50 ns, et qu'il faut prévoir un temps de stabilisation de la tension à cause de rebonds éventuels,il ne nous reste que ≈ 90 ns pour commuter jusqu'à 345 V.

La mise en œuvre d'un tel système n'est pas évidente. La conception et la réalisation de ce CHTHF (Commutateur Haute Tension Haute Fréquence) ont été entièrement assurées par des électroniciens de l'Institut d'Optique (André Villing, Alain Aide, et Frédéric Moron).

A.1.1 Montage électronique

Le schéma électrique du CHTHF est représenté sur la figure A.1. Une électronique de commande (fig. A.2) permet de transformer le signal TTL d'entrée en un signal MOS qui commande les transistors MTP. Les quatre tensions de modulation $0, 115, 230$ et 345 V sont appliquées sur les bornes V_0, V_1, V_2 et V_3 respectivement.

Le transistors pilotant les niveaux 0, $1-$ et $2-$ sont de type N, et leur niveau au repos est le niveau 0 de la commande TTL, tandis que les transistors pilotant les niveaux 3, $2+$, et $1+$ sont de type P, et leur niveau de repos est le niveau 1 de la commande TTL.

A.1.2 Théorie des opérations

Le module de commutation CHTHF fonctionne sur le principe suivant. Pour appliquer une tension V_i à l'instant nT, on prend en compte l'état du modulateur à l'instant $(n-1)T$. Ainsi pour aller d'une tension V_i vers une tension V_{i+1} ($V_i < V_{i+1}$) on applique une impulsion sur les commandes 3 ou $2+$ ou $1+$. Un courant s'établit et va charger le modulateur. Inversement pour aller d'une tension V_i vers une tension V_{i-1} ($V_{i-1} < V_i$), on applique une impulsion sur les commandes 0 ou $1-$ ou $2-$. Le modulateur se décharge jusqu'à atteindre la tension V_{i-1}. Le schéma A.4 résume ces opérations.

Le module fonctionne correctement à condition que deux transistors ne soient jamais ouverts en même temps. Si un transistor de type N se trouve ouvert en même temps qu'un type P, il y court-circuit, et le CHTHF peut être endommagé. Ainsi il faut fermer un transistor avant d'ouvrir le prochain. Pour cela on va synchroniser les opérations sur les deux fronts de l'horloge pilote.

A.1.3 Caractéristiques

La tension de commande du modulateur électro-optique met un certain temps à s'établir. Nous établissons donc le signal de commande du CHTFT un pulse d'horloge avant le signal de l'acoustooptique. Ainsi au temps

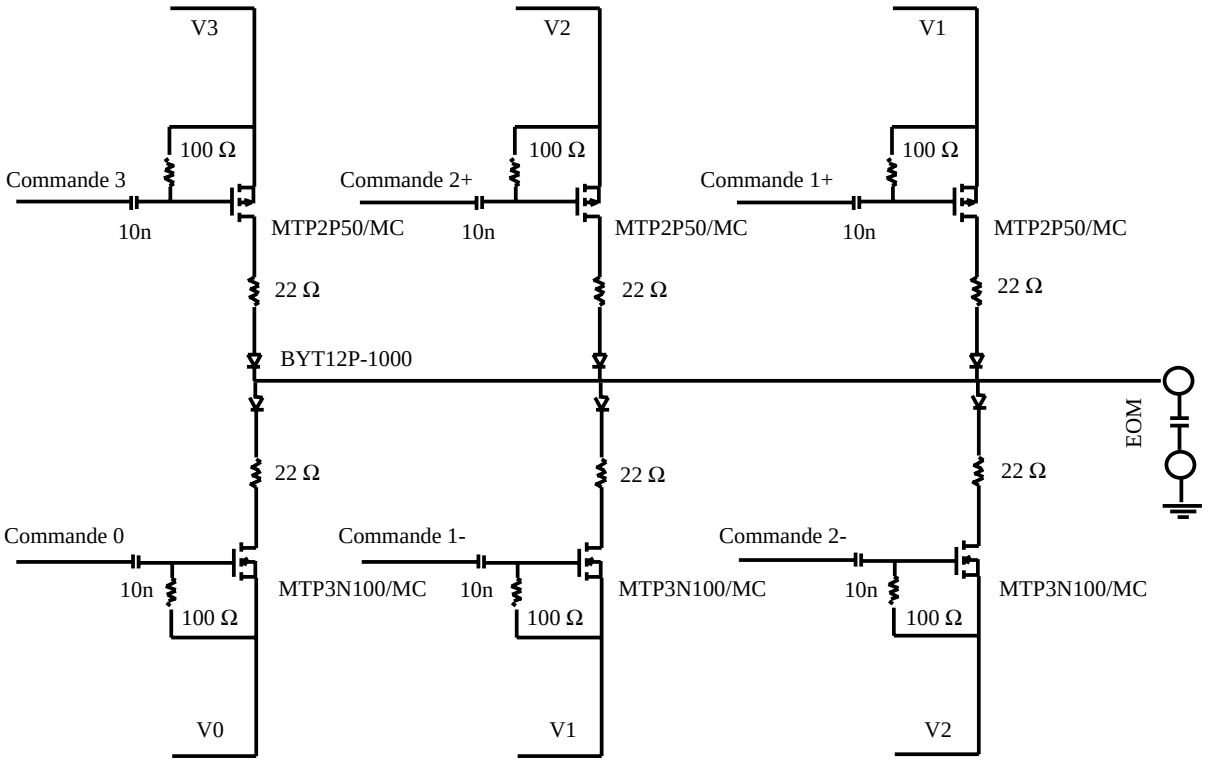


Figure A.1: *Schéma électrique du Commutateur Haute Tension Haute Frequence*

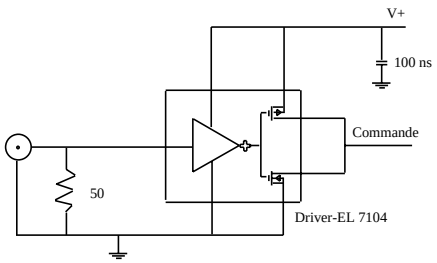


Figure A.2: *Schema électrique de la commande des MOSFET de commutation*

$nH - 1$ le module FPGA calcule les deux nombres aléatoires, et en fonction de l'état actuel du modulateur, fournit un signal sur une des commandes du CHTHF. Pour éviter les croisements, la commande d'arrêt de la porte en service est effectuée sur le front montant de l'horloge, tandis que la commande d'ouverture de la porte suivante est effectuée sur un front descendant. La figure A.5 montre une partie des sequences de gestion de l'électronique de contrôle.

La puissance consommée par cette électronique est relativement faible. A fort taux de répétition, on l'estime à environ $50 - 100$W. Les courants atteignent des valeurs crêtes de l'ordre de 10 A, mais valent seulement $0.5A$ en moyenne pour chaque commutation.

La commutation de la haute tension génère des radiations électromagnétiques sur un spectre large, qui interfèrent avec le reste de l'électronique. Ces perturbations ont été pratiquement éliminées en plaçant le modulateur dans une cage de Faraday, en blindant tous les fils d'alimentation, et en disposant des filtres RC entre l'alimentation et le CHTHF.

Remarquons aussi qu'après quelque minutes de fonctionnement, la température du module dépasse 60^oC,

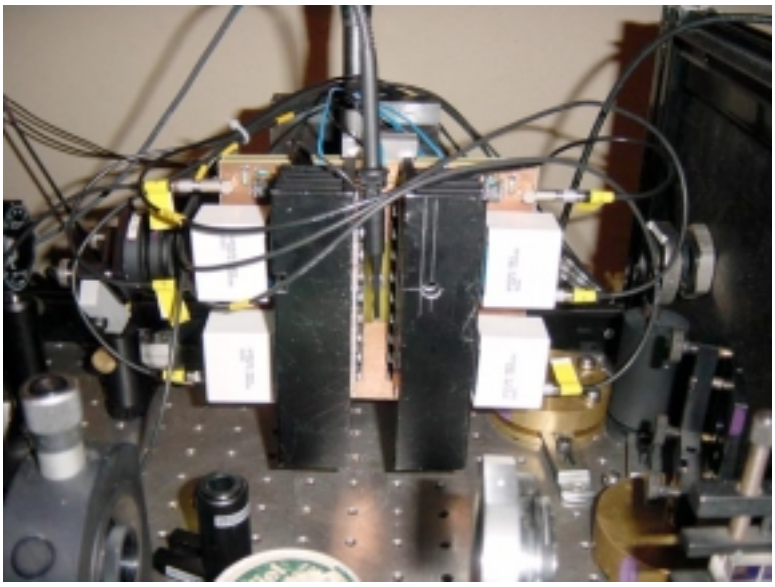


Figure A.3: *Photo du commutateur HTHF.*

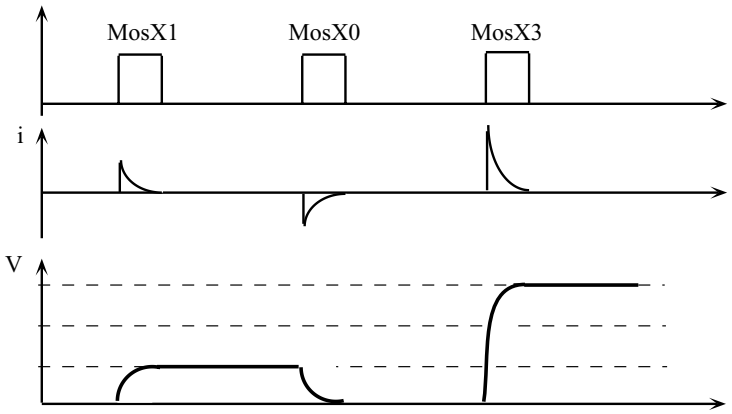


Figure A.4: *Schéma électrique de la commande des MOSFET de commutation*

et il y a risque de détérioration. Ainsi nous n'appliquerons la haute tension que pendant la durée minimum nécessaire à l'échange de données.

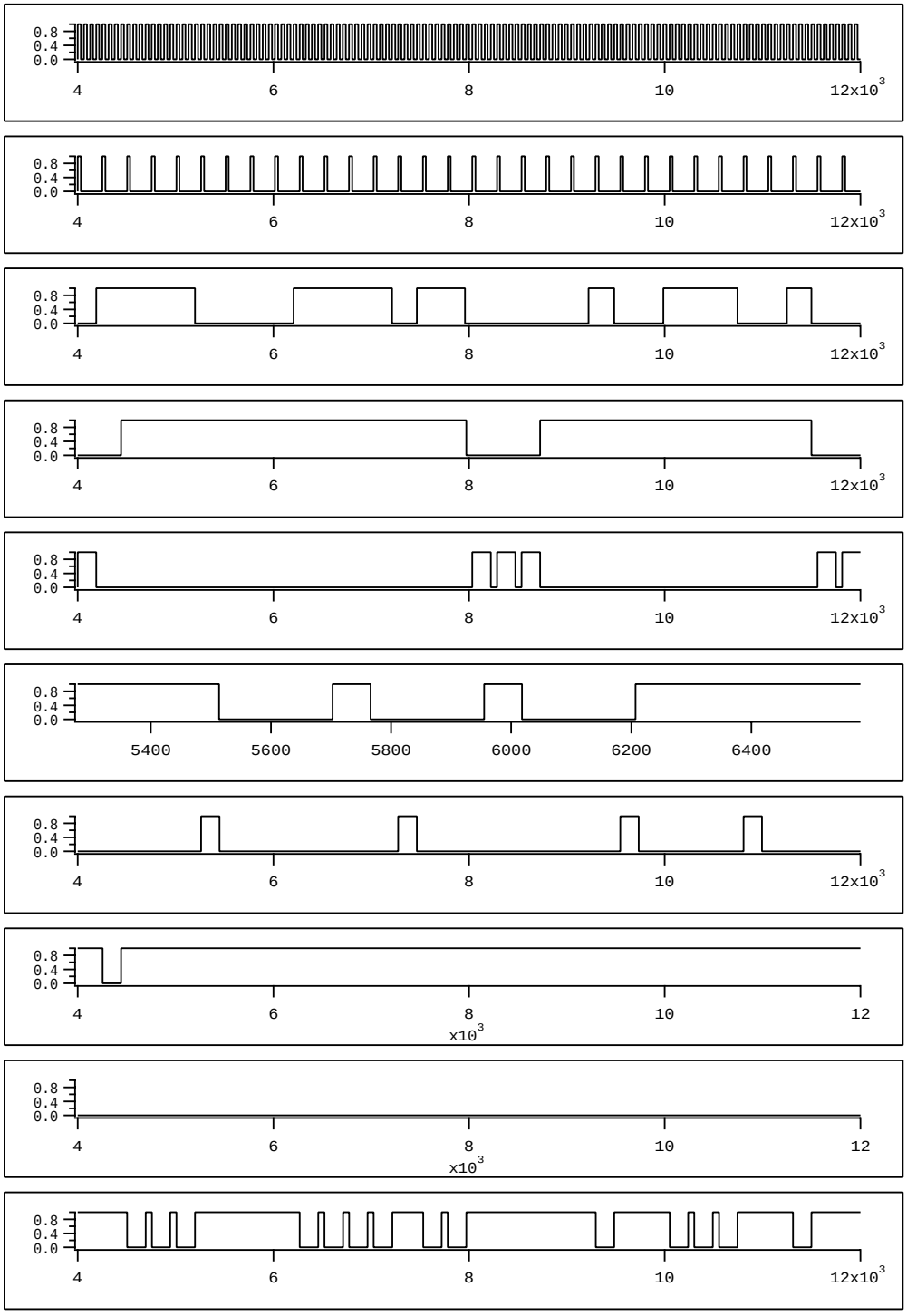


Figure A.5: *Divers signaux de synchronisations produits par le module FPGA. Dans l'ordre on a : l'horloge stable, la sortie AO, les générateurs pseudo-aléatoires bit A et bit B, puis les commandes 0,1-,1+,2-,2+,3+*

Bibliographie

[1] A. K. V. NIEUWENHOF, “La cryptographie militaire”, (1883).

[2] S. CAVALLAR *et al.*, “Factorization of a 512-bit RSA modulus”, *Lecture Notes in Computer Science* **1807**, 1 (2000), advances in Cryptology, Springer Berlin.

[3] P. SHOR, “Polynomial-time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer”, *Proc. of the IEEE International conference on Computers, Systems, and Signal Processing* 124 (1994), repris dans quant-ph/9508027.

[4] L. M. K. VANDERSYPEN, M.STEFFEN, G. BREYTA, C. S. YANNONI, M. H. SHERWOOD, ET I. L. CHUANG, “Experimental realization of Shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance”, *Nature* **414**, 883 (2001).

[5] C. SHANNON, “Communication Theory of Secrecy Systems”, *Bell System Technical Journal* **28**, 656 (1949).

[6] W. K. WOOTTERS ET W. H. ZUREK, “A single quantum cannot be cloned.”, *Nature* **299**, 802 (1982).

[7] S. SINGH, *Histoire des codes secrets* (Fourth Estate Limited, 1999).

[8] C. BENNETT ET G. BRASSARD, “Quantum Cryptography: Public Key Distribution and Coin Tossing”, *Proc. of the IEEE International conference on Computers, Systems, and Signal Processing* 175 (1984), bangalore, India.

[9] C. BENNETT, F.BESSETTE, G. BRASSARD, L. SALVAIL, ET J. SMOLIN, “Experimental Quantum Cryptography”, *J. of Cryptology* **5**, 3 (1992).

[10] N. GISIN, G. RIBORDY, W. TITTEL, ET H. ZBINDEN, “Quantum cryptography”, *Rev .Mod. Phys* **74**, 145 (2002), et les références incluses.

[11] ID Quantique, http://www.idquantique.com/.

[12] G. BRASSARD, N. LÜTKENHAUS, T. MOR, ET B. C.SANDERS, “Security Aspects of Practical Quantum Cryptography”, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1330 (2000).

[13] N. LÜTKENHAUS, “Security against individual attacks for realistic quantum key distribution”, *Phys. Rev. A* **61**, 052304 (2000).

[14] W. BUTTLER, R. HUGHES, S. LAMOREAUX, G. MORGAN, J. NORDHOLT, ET C. PETERSON, “Daylight Quantum Key Distribution over 1.6 km”, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5652 (2000).

[15] E. KNILL, L. LAFLAMME, ET G. MILBURN, “Efficient linear optics quantum computation”, *Nature* **409**, 46 (2001).

[16] J. KIM, O. BENSON, H. KAN, ET Y. YAMAMOTO, “A single-photon turnstile device”, *Nature* **397**, 500 (1999).

[17] C. BRUNEL, B. LOUNIS, P. TAMARAT, ET M.ORRIT, “Triggered source of single photons based on controlled single molecule fluorescence”, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2722 (1999).

[18] C. K. LAW ET H. J. KIMBLE, “Deterministic generation of a bit-stream of single-photon pulses”, *J. Mod. Opt.* **44**, 2067 (1997).

[19] F. DEMARTINI, O. JEDRKIEWICZ, ET P. MATALONI, "Generation of quantum photon states in an active microcavity trap", *J. Mod. Opt.* **44**, 2053 (1997).

[20] R. BROURI, A. BEVERATOS, J. P. POIZAT, ET P.GRANGIER, "Single photon generation by pulsed excitation of a single dipole", *Phys. Rev. A* **62**, 063814 (2000).

[21] L. MANDEL ET E. WOLF, *Optical coherence and quantum optics* (Cambridge University press, 1995).

[22] C. W. GARDINER, *Quantum Noise* (Springer-Verlag, 1991), p. 153.

[23] C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC, ET G. GRYNBERG, *Processus d'interaction entre photons et atomes* (InterEditions CNRS, 1988).

[24] P. GRANGIER, *Etude expérimentale de propriétés non-classiques de la lumière : interférence à un seul photon*, Thèse de doctorat, Université de Paris XI, 1986.

[25] R. J. GLAUBER, (Gordon and Breach, 1965), ecole d'été des Houches.

[26] H. KIMBLE, M. DAGENAIS, ET L. MANDEL, "Photon Antibunching in Resonance Fluorescence", *Phys. Rev. Lett.* **39**, 691 (1977).

[27] F. DIEDRICH ET H. WALTER, "Nonclassical radiation of a single stored ion", *Phys. Rev. Lett.* **58**, 203 (1987).

[28] T. BASHÉ, W. MOERNER, M. ORRIT, ET H.TALON, "Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid", *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1516 (1992).

[29] F. DE MARTINI, G. DI GUISEPPE, ET M. MARROCCO, "Single-mode generation of quantum photon states by excited single molecules in a microcavity trap", *Phys. Rev. Lett.* **76**, 900 (1996).

[30] J. M. GERARD ET B. GAYRAL, "InAs quantum dots: artificial atoms for solid-state cavity-quantum electrodynamics", *Physica-E* **9**, 131 (2001).

[31] P. MICHLER, A. IMAMOĞLU, M. MASON, P. CARSON, G. STROUSE, ET S. BURATTO, "Quantum correlation among photons from a single CdSe quantum dot at room temperature", *Nature* **406**, 968 (2000).

[32] A. COLLINS, M. THOMAZ, ET M. JORGE, "Luminescence decay time of the 1.945 eV center in type Ib diamond", *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, 2177 (1983).

[33] A. COLLINS, *J. Phys.: Condens. Matter* **16**, 6691 (1983).

[34] A. M. ZAITSEV, *Optical Properties of Diamond, A Data Handbook* (Springer, 2000).

[35] A. GRUBER, A. DRÄBENSTEDT, C.TIETZ, L. FLEURY, J. WRACHTRUP, ET C. VON BORCZYSKOWKI, "Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers", *Science* **276**, 2012 (1997).

[36] A. DRÄBENSTEDT, *Hochauflösende Spektroskopie und Mikroskopie einzelner Moleküle und Farbzentren bie tiefen Temperaturen*, Thése de doctorat, Fakultät für Naturwissenschaften der Technischen Universität Chemnitz, 1999.

[37] A. DRÄBENSTEDT, L. FLEURY, C.TIETZ, F. JELEZKO, S. KILIN, A. NIZOVTZEV, ET J. WRACHTRUP, "Low-temperature microscopy and spectroscopy on single defect centers in diamond", *Phys. Rev. B* **60**, 11503 (1999).

[38] H. DYER, F. RAAL, L. DU PREEZ, ET J. LOUBSER, *Phil. Mag.* **11**, 763 (1965).

[39] Y. MITA, "Change of absorption spectra in type-Ib diamond with heavy neutron irradiation", *Phys. Rev. B* **53**, 11360 (1995).

[40] N. REDDY, N. MANSON, ET E. KRAUSZ, *J. Lumin* **38**, 46 (1987).

[41] X. HE, N. MANSON, ET P. FISK, "Electronic structure of the N-V center in diamond: Experiments", *Phys. Rev. B* **53**, 13427 (1996).

[42] E. VAN OORT, B. DER KAMP, R. SITTERS, ET M. GLASBEEK, "Microwave-induced line-narrowing of the N-V defect absorption in diamond", *J. Lumin* **48**, 803 (1991).

[43] A. LENEF, S. BROWN, D. REDMAN, S. RAND, J.SHIGLEY, ET E. FRITSCH, "Electronic structure of the N-V center in diamond: experiments", *Phys. Rev. B* **53**, 13427 (1996).

[44] J. LOUBSER ET J. VAN WYK, *Diamond Research* **11**, 4 (1977).

[45] M. SHAHRIAR, P. HEMMER, S. LLOYD, P. BHATIA, ET A.E.CRAIG, "Solide-state quantum computing using spectral holes", *Phys. Rev. A* **66**, 032301 (2002).

[46] R. BROURI, A. BEVERATOS, J.-P. POIZAT, ET P. GRANGIER, "Single photon emission from colored centers in diamond", *Opt. Lett.* **25**, 1294 (2000).

[47] R. H. BROWN ET R. TWISS, "Correlation between photons in two coherent beams of light", *Nature* **177**, 22 (1956).

[48] M. Minsky, Appareil de microscopie, 1957, brevet US #3013467.

[49] M. MINSKY, "Memoir on inventing the confocal scanning microscope", *Scanning* **10**, 128 (1988).

[50] J. LICHTMAN, "La microscopie confocale", *Pour la science* **204**, 62 (1994).

[51] C. Brunel, Communication privée.

[52] C. KURTSIEFER, P. ZARDA, S. MAYER, ET H. WEINFURTER, "The breakdown flash of Silicon Avalanche diodes - backdoor for eavesdropper attacks?", *J. Mod. Opt.* **48**, 2039 (2001).

[53] A.BEVERATOS, R.BROURI, J. POIZAT, ET P.GRANGIER, "Bunching and antibunching from single NV color centers in diamond", *QCM& C 3 Proceedings* (2001).

[54] C.KURTSIEFER, S. MAYER, P. ZARDA, ET H. WEINFURTER, "A robust all-solid-state source for single photons", *Phys. Rev. Lett.* **85**, 290 (2000).

[55] J. BERNARD, L. FLEURY, H. TALON, ET M. ORRIT, "Photon bunching in the fluorescence from single molecules: a probe for intersystem crossing", *J. Chem. Phys.* **98**, 850 (1993).

[56] T. Gacoin, Communication privée sur ses travaux.

[57] A.BEVERATOS, R.BROURI, T.GACOIN, J. POIZAT, ET P.GRANGIER, "Nonclassical radiation from diamond nanocrystals", *Phys. Rev. A* **64**, 061802 (2001).

[58] A. EINSTEIN, *Z. Phys.* **18**, 121 (1917).

[59] E. PURCELL, *Phys. Rev.* **69**, 681 (1946).

[60] K. H. DREXHAGE, *J. Lumin.* **1**, 693 (1970).

[61] K. H. DREXHAGE, *Progress in Optics* **XII**, (1974).

[62] R. HULET, E. HILFER, ET D. KLEPPNER, "Inhibited spontaneous emission by a Rydberg atom", *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1903 (1985).

[63] P.GOY, J. RAIMOND, M. GROSS, ET S. HAROCHE, "Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission", *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1903 (1983).

[64] M. BAYER, T. REINECKE, F. WEIDNER, A. LARIONOV, A. MCDONALD, ET A. FORCHEL, "Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators", *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3168 (2001).

[65] M. PELTON, J. VUKOVIC, G. SOLOMON, A. SCHERER, ET Y. YAMAMOTO, "Three-dimensionally confined modes in micropost microcavities: quality factors and Purcell factors", *IEEE Journal of Quantum Electronics* **38**, 170 (2002).

[66] G.BOURDON-G, I.ROBERT, A.ADAMS, K.NELEP, I.SAGNES, J.M.MOISON, ET I.ABRAM, "Room temperature enhancement and inhibition of spontaneous emission in semiconductor microcavities", *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1345 (2000).

[67] C. KITTEL, *Physique de l'état solide* (Dunod, 1983), pour une explication simple du champ local.

[68] R. J. GLAUBER ET M. LEWENSTEIN, "Quantum optics of dielectric media", *Phys. Rev. A* **43**, 467 (1991).

[69] J. KNOESTER ET S. MUKAMEL, "Intermolecular forces, spontaneous emission, and superradiance in a dielectric medium: polariton-mediated interactions", *Phys. Rev. A* **40**, 7065 (1989).

[70] S. BARNETT, B. HUTTNER, ET R. LOUDON, "Spontaneous emission in absorbing dielectric media", *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3698 (1992).

[71] S. HO ET P. KUMAR, "Quantum optics in a dielectric: macroscopic electromagnetic-field and medium operators for a linear dispersive lossy medium-a microscopic derivation of the operators and their commutation relations", *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 1620 (1993).

[72] E. YABLONOVITVH ET T. GMITTER, "Inhibited and enhanced spontaneous emission from optically thin AlGaAs / GaAs Double heterostructures", *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2546 (1988).

[73] H. URBACH ET G. L. J. A. RIKKEN, "Spontaneous emission from a dielectric slab", *Phys. Rev. A* **57**, 3913 (1998).

[74] F. J. P. SCHUURMANS, D. T. N. DE LANF, G. H. WEGDAM, R. SPRIK, ET A. LAGENDIJK, "Local-field effects on spotaneous emission in a dense supercritical gas", *Phys. Rev. Lett.* **23**, 5077 (1998).

[75] G. L. J. A. RIKKEN ET Y. A. R. R. KESSENER, "Local field effects and electric and magneric dipole transitions in dielectrics", *Phys. Rev. Lett.* **74**, 880 (1995).

[76] H. Schniepp et V. Sandoghsar, communication privée.

[77] G. LAMOUCHE, P. LAVALLARD, ET T. GACOIN, "Optical properties of dye molecules as a function of the surrounding dielectric medium", *Phys. Rev. A* **59**, 4668 (1999).

[78] W. LUKOSZ ET R. E. KUNZ, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane dielectric interface. II. Radiation patterns of perpendicular oriented dipoles", *J. Opt. Soc. Am.* **67**, 1651 (1977).

[79] W. LUKOSZ, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane dielectric interface. III. Radiation patterns of dipoles with arbitrary orientation", *J. Opt. Soc. Am.* **69**, 1495 (1979).

[80] W. LUKOSZ, "Light emission by multipole sources in thin layers. I. Radiation patterns of electric and magnetic dipoles", *J. Opt. Soc. Am.* **71**, 744 (1981).

[81] G. DAVIES, *J. Phys.: Condens. Matter* **7**, 3797 (1974).

[82] D. REDMAN, S. BROWN, ET S. C. RAND, "Origin of persistent hole burning of N-V centers in diamond", *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, 768 (1992).

[83] X.-F. HE, P. H. FISK, ET N.B.MANSON, "Paramagnetic Resonance of Photoexcited N-V Defects in Diamond: Level Anticrossing in 3A Ground State", *Phys. Rev. B* **47**, 8809 (1993).

[84] X.-F. HE, P. H. FISK, ET N.B.MANSON, "Paramagnetic Resonance of Photoexcited N-V Defects in Diamond: Hyperfine interaction with 14N nucleus", *Phys. Rev. B* **47**, 8816 (1993).

[85] Manson, communication privée.

[86] S. V. POPOV, S. V. CHERNIKOV, ET J. R. TAYLOR, *Opt. Comm.* **174**, 231 (2000).

[87] R. W. BOYD, *Nonlinear Optics* (Academic press inc., 1992).

[88] C.SANTORI, M. PELTON, G. SOLOMON, Y. DALE, ET Y. YAMAMOTO, "Triggered Single Photons from a Quantum Dot", *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1502 (2001).

[89] H.Rigneault, communication privée. Le miroirs peuvent aussi être photoblanchis sous une lampe UV pendant quelque jours.

[90] H. K. LO ET H. F. CHAU, "Unconditional security of quantum key distribution over arbitrarily long distances", *Science* **283**, 2050 (1999).

[91] P. SHOR ET J. PRESKILL, "Simple Proof of Security of the BB84 Quantum Key Distribution Protocol", *Phys. Rev. Lett.* **85**, 441 (2000).

[92] J. RARITY, P. TAPSTER, ET P. GORMAN, "Secure free-space key exchange to 1.9 km and beyond", *J. Mod. Opt.* **48**, 1887 (2001).

[93] R. HUGHES, W. T. BUTTLER, P. G. KWIAT, S. K. LAMOREAUX, G. L. MORGAN, J. E. NORDHOLT, ET C. G. PETERSON, "Free-space quantum key distribution in daylight", *J. Mod. Opt.* **47**, 549 (2000).

[94] C. KURTSIEFER, P. ZARDA, M. HANLDER, H. WEINFURTER, P. M. GORMAN, P. R. TAPSTER, ET J. G. RARITY, "Quantum cryptography: A step towards global key distribution", *Nature* **419**, 450 (2002).

[95] D. STUCKI, N. GISIN, O. GUINNARD, G. RIBORDY, ET H. ZBINDEN, "Quantum key distribution over 67 km with a plug& play system", *J. Phys.* **4**, 41 (2002).

[96] M. BOURENNANE, F. GIBSON, A. KARLSSON, A. HENING, P. JONSSON, T. TSEGAYE, D. LJUNGGREN, ET E. SUNDBERG, *Opt. Express* **4**, 383 (1999).

[97] R. J. HUGHES, G. L. MORGAN, ET C. G. PETERSON, "Quantum key distribution over a 48 km optical fibre network", *J. Mod. Opt.* **47**, 553 (2000).

[98] P. D. TOWNSEND, J. G. RARITY, ET P. R. TAPSTER, "Enhanced single photon fringe visibility in a 10 km-long prototype quantum cryptography channel", *Elec. Lett.* **29**, 1291 (1993).

[99] J. MÉROLLA, Y. MAZURENKO, J. GOEDGEBUER, L. DURAFFOURG, H. PORTE, ET W. T. RHODES, "Quantum cryptographic device using single-photon phase modulation", *Phys. Rev. A* **60**, 1899 (1999).

[100] A. K. EKERT, "Quantum cryptography based on Bell's theorem", *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661 (1991).

[101] T. JENNENWEIN, C. SIMON, G. WEIHS, H. WEINFURTER, ET A. ZEILINGER, "Quantum Cryptography with entangled photons", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4729 (2000).

[102] D. S. NAIK, C. G. PETERSON, A. G. WHITE, A. J. BERGLUND, ET P. G. KWIAT, "Entangled State quantum cryprography", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4733 (2000).

[103] W. TITTEL, J. BRENDEL, H. ZBINDEN, ET N. GISIN, "Quantum Cryptography using Entangled Photons in Energy-Time Bell states", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4737 (2000).

[104] G. RIBORDY, J. BRENDEL, J.-D. GAUTIER, N. GISIN, ET H.ZBINDEN, "Long-Distance entanglement-based quantum key distribution", *Phys. Rev. A* **63**, 012309 (2001).

[105] A.BEVERATOS, R.BROURI, T.GACOIN, A.VILLING, J. POIZAT, ET P.GRANGIER, "Single photon quantum cryptography", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 187901 (2002).

[106] E. BOUTILLON, A. GHAZEL, J.-L. DANGER, ET G. GULAK, *14ième Colloque du GRETSI, Toulouse Sept. 2001* , http://lester.univ-ubs.fr:8080/ Eboutillon/publications.html.

[107] "Linear Feedback Shift Register v2.0", , www.xilinx.com/ipcenter.

[108] A. STEFANOV, N. GISIN, O. GUINNARD, L. GUINNARD, ET H. ZBINDEN, "Optical quantum random number generator", *J. Mod. Opt.* **47**, 595 (2000).

[109] T. JENNEWEIN, U. ACHLEITNER, G. WEIHS, H. WEINFURTER, ET A. ZEILINGER, "A fast and compact quantum random number generator", *Rev. Scient. Instrum.* **71**, 1675 (2000).

[110] J. RARITY, P. OWENS, ET P. TAPSTER, "Quantum Random Number Generation and Key Sharing", *J. Mod. Opt.* **41**, 2435 (1993).

[111] P. NIELSEN, C. SCHORI, J. SORENSEN, L. SALVAIL, I. DAMGARD, ET E. POLZIK, *J. Mod. Opt.* **48**, 1921 (2001), http://www.cki.au.dk/experiment/qrypto/doc/.

[112] C. SHANNON, "A mathematical theory of communication", *Bell System Technical Journal* **27**, 379 (1948).

[113] N. LÜTKENHAUS, "Estimates for practical quantum cryptography", *Phys. Rev. A* **59**, 3301 (1999).

[114] P. GRANGIER, J.-A. LEVENSON, ET J.-P. POIZAT, "Quantum non-demolition measurements in optics", *Nature* **396**, 537 (1998).

[115] G. NOGUES, A. RAUSCHENBEUTEL, S. OSNAGHI, M. BRUNE, J. RAIMOND, ET S. HAROCHE, "Seeing a single photon without destroying it", *Nature* **400**, 239 (1999).

[116] Y.-H. KIM, S. P. KULIK, ET Y. SHIH, "Quantum Teleportation of a polarization state with a complete bell state measurement", *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1370 (2001).

[117] P. BERTET, S. OSNAGHI, P. MILMAN, A. AUFFEVES, D. M. B. P. MAIOLI A, J. RAIMOND, ET S. HAROCHE, "Generating and probing a two-photon Fock state with a single atom in a cavity", *Phys. Rev. Lett.* **88**, 143601 (2002).

[118] B. T. H. VARCO, S. BRATTKE, ET H. WALTHER, "Generation of Fock states in the micromaser", *J. Opt. B* **2**, 154 (2000).

[119] C. H. BENNETT, G. BRASSARD, S. BREIDBART, ET S. WIESNER, "Eavesdrop-detecting quantum communications channel", *IBM Technical Disclosure Bulletin.* **26**, 4363 (1984).

[120] T. DURT, "Comment on Practical Free-Space Quantum key Distribution over 1 km", *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2476 (1999).

[121] W. T. BUTTLER, R. J. HUGHES, P. KWIAT, S. K. LAMOREAUX, G. L. MORGAN, J. E. NORDHOLT, ET C. G. PETERSON, "Buttler *et al.* Reply", *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2477 (1999).

[122] S. FÉLIX, N. GISIN, A. STEFANOV, ET H. ZBINDEN, "Faint laser quantum key distribution : Eavesdropping exploiting multiphoton pulses", *arXiv : quant-ph/0102062* (2001).

[123] I. PROTSENKO, G. REYMOND, N. SCHLOSSER, ET P. GRANGIER, "Operation of a quantum phase gate using neutral atoms in microscopic dipole", *Phys. Rev. A* **65**, 052301 (2002).

[124] L. FLEURY, J. SEGURA, G. ZUMOFEN, B. HECHT, ET U. WILD, "Nonclassical photon statistics in single-molecule fluorescence at room temperature", *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000).

[125] B. LOUNIS ET W. MOERNER, "Single photons on demand from a single molecule at room temperature", *Nature* **407**, 491 (2000).

[126] F. TREUSSART, A. CLOUQUEUR, C. GROSSMAN, ET J. ROCH, "Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule embedded in a thin polymer film", *Opt. Lett.* **26**, 1504 (2001).

[127] F. TREUSSART, R. ALLÉAUME, V. L. FLOC'H, L. XIAO, J.-M. COURTY, ET J.-F. ROCH, "Direct Measurement of the Photon Statistics of a Triggered Single Photon Source", *Phys. Rev. Lett.* **89**, 093601 (2002).

[128] J.-F. Roch, communication privée.

[129] C. BECHER, A. KIRAZ, A. IMAMOGLU, W. SCHOENFELD, P. PETROFF, ET E. H. L. ZHANG, "Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot", *Phys. Rev. B* **63**, (2001).

[130] V. ZWILLER, H. BLOM, P. JONSSON, N. PANEV, S.JEPPESEN, T. TSEGAYE, E. GOOBAR, M. PISTOL, L. SAMUELSON, ET G. BJÖRK, "Single quantum dots emit single photons at a time : Antibunching experiments", *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2476 (2001).

[131] P. MICHLER, A. KIRAZ, C. BECHER, W. SCHOENFELD, P. PETROFF, L.ZHANG, E. HU, ET A. IMAMOGLU, "A quantum dot single photon turnstile device", *Science* **290**, 2282 (2000).

[132] E. MOREAU, I. ROBERT, J.-M. GÉRARD, I. ABRAM, L. MANIN, ET V. THIERRY-MIEG, "Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities", *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865 (2001).

[133] C. SANTORI, D. FATTAL, J. VUCKOVIC, G. SOLOMON, ET Y. YAMAMOTO, "Indistinguishable photons from a single-photon device", *Nature* **419**, 594 (2002).

[134] E. MOREAU, I. ROBERT, L. MANIN, V. THIERRY-MIEG, J. GÉRARD, ET I. ABRAM, "Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots", *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183601 (2001).

[135] M. HENNRICH, T. LEGERO, A. KUHN, ET G. REMPE, "Vacuum-stimulated Raman scattering based on adiabatic passage in a high-finesse optical cavity", *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4872 (2000).