



Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux – UPR
3407.

Institut des Sciences de l'Ingénierie et des Systèmes (INSIS)



Sujet de thèse :	Etude de l'influence de l'hydrogène et de la présence de contraintes sur les propriétés quantiques des films de diamant CVD dopés azote pour des applications en technologies quantiques
Laboratoire d'accueil	Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM – UPR 3407)
Equipe d'accueil	Diamant et Matériaux Carbonés (DMC)
Direction de thèse	Jocelyn Achard Professeur des Universités Université Sorbonne Paris Nord
Co-direction de thèse	Alexandre Tallaire Directeur de Recherche au CNRS IRCP - Chimie Paristech- Université Paris Sciences et Lettres (PSL)
Contact	jocelyn.achard@lspm.cnrs.fr – 01-49-40-34-26

Les centres colorés azote-lacune (dits NV) dans le diamant constituent l'un des systèmes à l'état solide les plus prometteurs pour des applications dans les technologies quantiques en raison de la possibilité de manipuler et lire optiquement l'état de spin de ces défauts, même à température ambiante. Ils pourraient ainsi permettre de réaliser des capteurs ultra-sensibles, performants et innovants (gyroscopes, analyseurs de spectres, imagerie magnétique, etc...) qui trouveraient des applications directes dans le domaine des communications quantiques, de la cryptographie, ou permettraient le développement de composants innovants pour les chaînes hyperfréquences et les capteurs inertiels. Récemment, la démonstration d'un MASER (laser à micro-onde) émettant en continu et fonctionnant à température ambiante a été faite à partir d'un cristal de diamant dans lequel une très forte densité de centre NV a été créée¹. Enfin, des applications telles que la RMN pourraient également bénéficier des propriétés de ce défaut spécifique.

Mais pour cela il est nécessaire de disposer de films de diamant de très haute qualité cristalline et dans lesquels la densité, l'environnement, l'orientation et la localisation spatiale des centres colorés qui y sont introduits sont parfaitement maîtrisés. Grâce au **dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma** (PA-CVD) les chercheurs disposent aujourd'hui d'un matériau reproductible et d'une pureté inégalée (< 1ppb azote) dans lequel la concentration isotopique en ¹²C peut être contrôlée, permettant d'atteindre des valeurs records de temps de

¹ J.D. Breeze et al. Continuous-wave room-temperature diamond maser, Nature, 555 (2018) 493-496.

cohérence proche de 2,5 ms². Ainsi la plupart des démonstrations qui ont été faites reposent sur les évolutions et progrès atteints dans les procédés de synthèse de ce matériau qui peuvent être qualifiées de « **key enabling technology** ». L'équipe Diamant et Matériaux Carbonés du LSPM (UPR 3407 du CNRS) est en particulier reconnue à l'échelle internationale pour le développement de procédés de fabrication innovants permettant la synthèse d'un matériau répondant en grande partie à ces exigences^{3,4,5}. L'obtention **de fortes densités de centres NV** (> 100 ppb) reste encore difficile en raison de leur faible efficacité de création mais le développement récent de post-traitements d'irradiation soit par des électrons, soit par des ions légers tels que l'hélium, associée à des recuits thermiques optimisés a permis d'améliorer considérablement la densité de centres NV présents. Elle peut maintenant être aussi élevée que 5 ppm ce qui correspond à une efficacité de conversion azote substitutionnel – centres NV de 20%⁶. Cette valeur représente l'état de l'art international. Néanmoins, le procédé de croissance CVD impose l'utilisation d'une phase gazeuse majoritairement constituée d'hydrogène moléculaire qui peut conduire à la formation de nombreux défauts parasites (NVH, VH...) qui détériorent les propriétés de cohérence. Par ailleurs, la qualité quantique des films homoépitaxiés est également fortement dépendante des contraintes résiduelles qui affectent les temps de cohérence des spins et la reproductibilité. Ainsi l'optimisation des conditions de croissance permettant, notamment à la reprise d'épitaxie, de limiter la formation de ces contraintes est un enjeu extrêmement important en particulier si l'on souhaite adresser des applications nécessitant des ensembles denses de centres NV.

Ainsi, les objectifs principaux de cette thèse seront de **d'étudier la formation de défauts ponctuels liés à la présence d'hydrogène dans les films de diamant et d'optimiser le procédé de synthèse de diamant dopé azote de manière à limiter l'apparition de contraintes**. Des études spécifiques seront ainsi menées pour : (i) évaluer l'influence de la présence d'hydrogène dans les films de diamant et l'interaction que ce composé peut avoir avec les centres NV. Pour ce faire, nous utiliserons un implantateur ionique disponible au sein de l'OR DMC qui permettra d'introduire de manière contrôlée (dose et profondeur) de l'hydrogène au sein de films préalablement dopés avec de l'azote. (ii) Déterminer les paramètres de croissance qui permettent de limiter l'apparition de contraintes lors de la reprise d'épitaxie. Nous étudierons en particulier le rôle des paramètres de croissance et des substrats utilisés. Les films seront caractérisés d'une part au sein du LSPM sur les bancs de caractérisation de photoluminescence et de cathodoluminescence, et d'autre part au sein de l'IRCP qui dispose

² E.D. Herbschleb et al. Ultra-long coherence times amongst room-temperature solid-state spins, *Nature Communications*, 10 (2019) 3766.

³ J. Achard et al. Chemical vapour deposition diamond single crystals with nitrogen-vacancy centres: a review of material synthesis and technology for quantum sensing applications, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 53 (2020) 313001.

⁴ Horsley, A., et al., Microwave Device Characterization Using a Widefield Diamond Microscope. *Physical Review Applied*, 2018. 10(4): p. 044039.

⁵ Tallaire, A., et al., Highly photostable NV centre ensembles in CVD diamond produced by using N₂O as the doping gas. *Applied Physics Letters*, 2017. 111(14): p. 143101.

⁶ M. Ngambou et al. Improving NV centre density during diamond growth by CVD process using N₂O gas, *Diamond and Related Materials*, 123 (2022) 108884.

d'un banc de caractérisation ODMR et d'un système d'imagerie des contraintes par biréfringence et avec qui nous collaborons depuis de nombreuses années.

Au-delà de l'allocation doctorale demandée, cette thèse s'appuiera également sur un financement obtenu dans le cadre du projet européen Quanterra intitulé MAESTRO (Mastering Technologies For Scalable Spin-Based Solid-State Quantum Processors) dont l'objectif est de développer des briques technologiques permettant de développer des architectures de qubits à l'état solide à partir de centres NV fonctionnant à température ambiante. Le candidat en thèse pourra ainsi s'appuyer, au-delà de l'IRCP, sur un fort réseau de collaborations notamment européen, et pourra se rendre dans différents laboratoires pour des campagnes de mesures spécifiques.