

Festkörperbasierte Einzelphotonenquelle

Diplomarbeit an der Fakultät für Physik
der
Ludwig-Maximilians-Universität München
Arbeitsgruppe Prof. Dr. Harald Weinfurter

Christoph Braig

14. Dezember 2001

Erstgutachter: Prof. Dr. Harald Weinfurter
Zweitgutachter: Prof. Dr. Herbert Walther

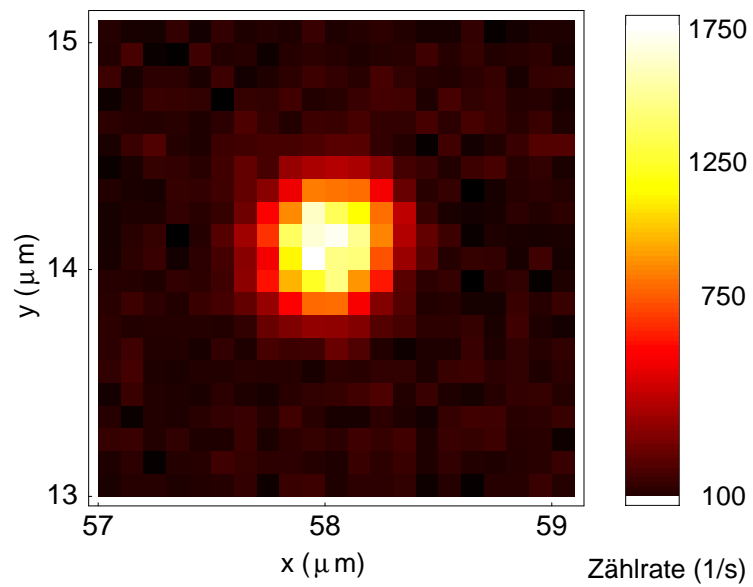


Abbildung 1: Fluoreszenz eines isolierten NV-Zentrums in 1b-Diamant

Kristalle sind wie Menschen: Ihre Mängel machen sie so interessant.

(P. Townsend)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
I	Ein Grundlagenexperiment zur Quantenmechanik	3
2	Theorie nichtklassischer Lichtquellen	5
2.1	Photonenstatistik	5
2.1.1	Spontanemission und nichtklassisches Licht	5
2.1.2	Intensitätskorrelation verschiedener Lichtquellen	9
2.2	Komplementarität und Interferometrie	11
2.2.1	Das Komplementaritätsprinzip	12
2.2.2	Einzelphotonen-Interferometrie	14
3	Realisierung des Experiments	21
3.1	NV-Zentren im konfokalen Mikroskop	21
3.2	Aufbau des Interferometers	25
3.2.1	Optik	25
3.2.2	Stabilisierung	30
3.2.3	Detektoren	32
3.3	Messtechnische Verfahren	35
3.3.1	Interferenzmessung	35
3.3.2	Messung der Photonenzustand	37
4	Demonstration der Komplementarität	45
4.1	Das verwendete NV-Zentrum	45
4.2	Versuchsergebnisse	48
4.2.1	Anregung unterhalb der Sättigungsleistung	49
4.2.2	Anregung nahe der Sättigungsleistung	54
4.2.3	Anregung weit über der Sättigungsleistung	58
4.2.4	Diskussion	60

II	Einzelne Photonen für die Quantenkommunikation	65
5	Möglichkeiten und Ziele	67
5.1	Punktdefekte in Diamant	67
5.2	Anforderungen an einen Krypto-Sender	71
6	CVD-Diamant als kontrollierbares System	75
6.1	Grundlagen der CVD-Technologie	75
6.2	Erste optische Untersuchungen	78
7	Das SiV - Zentrum	89
7.1	Struktur und optische Eigenschaften	89
7.2	Untersuchung optischer CVD-Fenster	92
7.3	Erzeugung einzeln detektierbarer SiV - Defekte	101
7.3.1	Dotierung	101
7.3.2	Ionenimplantation	101
7.3.3	homoepitaktische Nano-Diamanten	103
8	Der 694 nm - Defekt in 1b-Diamant	107
8.1	Leuchtkraft, Häufigkeit und Größe	107
8.2	Spektrum und Sättigungsverhalten	109
8.3	Herkunft der 694nm-Linie	114
8.4	Diskussion	116
9	Zusammenfassung und Ausblick	119
	Danksagung	127
	Erklärung	129

Kapitel 1

Einleitung

Ein aktuelles und bislang noch nicht vollkommen zufriedenstellend gelöstes Problem der Quantenoptik besteht in der kontrollierten Erzeugung einzelner Photonen, also Lichtquanten, die streng „nacheinander“ emittiert werden. Als Folge davon weisen die ausgesandten Photonen regelmäßige Abstände auf, als dies bei herkömmlichen thermischen und kohärenten Lichtquellen der Fall ist. Man spricht deshalb bei einem derartigen, nur quantenmechanisch zu beschreibenden Strahlungsfeld auch von „nichtklassischem“ Licht. Seit den ersten experimentellen Nachweisen [1, 2, 3] wurden mehrere Methoden zur Erzeugung solcher Strahlung entwickelt, die häufig wie in der parametrischen Fluoreszenz [4] nichtlineare optische Kristalle einsetzen, zum Teil aber auch auf einem optischen Übergang zwischen zwei Zuständen eines einzelnen Quantensystems beruhen. Um Missverständnissen vorzubeugen, soll im folgenden der Begriff der „Einzelphotonenquelle“ ausschließlich in Verbindung mit dem zuletzt genannten Verfahren gebraucht werden.

Um Einzelphotonen zu generieren [5], kann z. B. in Anlehnung an die Pionierarbeiten von Mandel [1] und Walther [3] ein geeigneter optischer Übergang einzelner, selektiv angeregter Atome bzw. in einer Falle gefangener Ionen benutzt werden – ein mit großem technischen Aufwand verbundener Ansatz. In ähnlicher Weise bedienen sich verschiedene Forschungsgruppen der Fluoreszenz mehr oder weniger stabiler Moleküle, die in Polymeren o. ä. fixiert und optisch angeregt werden können [6]. Solche Emitter lassen sich freilich in Form von Quantenpunkten auch künstlich erzeugen. Hier entstehen bei tiefen Temperaturen Potentialtöpfe mit mehreren gebundenen elektronischen Zuständen. Auch in diesem Fall können Übergänge zwischen diesen Zuständen zur Erzeugung einzelner Photonen genutzt werden [8, 9].

Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist eine Einzelphotonenquelle auf Festkörperbasis. Wie bereits gezeigt wurde [10, 11], lassen sich damit ebenso einfach wie effizient Einzelphotonen produzieren: Das Diamantgitter fungiert als natürli-

che und robuste „Falle“ für zufällig verteilte Punktdefekte, die bei genügend kleiner Konzentration optisch einzeln adressierbar sind. Bisher wird ein Defekt verwendet, welcher aus der Kombination eines Stickstoffatoms (engl. Nitrogen) mit einer Fehlstelle (Vacancy) besteht und deshalb als NV-Zentrum bezeichnet wird. Dessen große Stabilität erlaubt, soweit bekannt, einen zeitlich unlimitierten Betrieb der Quelle bei Raumtemperatur.

Weshalb besteht nun aber ein solch großes Interesse an einem praktikablen Einzelphotonengenerator? Hier kann prinzipiell zwischen dem Grundlagen- und dem Anwendungsaspekt unterschieden werden.

In den vergangenen Jahren ist es durch experimentelle Fortschritte möglich geworden, theoretische Vorhersagen der Quantenmechanik im Labor zu prüfen. Eine besondere Rolle spielt in dem Zusammenhang die Photonenstatistik, also die (zeitliche) Verteilung der Lichtteilchen in einem physikalischen System. Das erstmals von Carmichael und Walls [12] vorhergesagte „photon antibunching“ widerspricht der klassischen Wellenvorstellung vom Licht und gewährt darüber hinaus tiefere Einblicke in den Emissionsprozess elektromagnetischer Strahlung einzelner optischer Übergänge. Der Nachweis und die Untersuchung des von NV-Zentren ausgesandten Lichts ist ebenso Ziel dieser Diplomarbeit wie die Demonstration des Komplementaritätsprinzips, die sich mit Hilfe der gegebenen Einzelphotonenquelle besonders schön realisieren lässt. Während die Phasendifferenz – also der Wellencharakter des Lichts – zwischen den beiden Armen eines Interferometers für das Auftreten des Interferenzmusters verantwortlich ist, beruht der Nachweis nichtklassischer Photonenstatistik auf der Messung des Amplitudenquadrats, also dem Teilchenaspekt elektromagnetischer Strahlung. Dass dabei in der Tat einzelne Photonen quasi mit sich selbst interferieren, wird mittels eines Hanbury-Brown-Twiss-Experiments nachgewiesen.

Abgesehen von den eben beschriebenen Experimenten zu quantenmechanischen Grundlagen finden Einzelphotonenquellen eine direkte praktische Anwendung in der Quantenkryptographie. Bekanntlich ist mit Photonen, die geeignet in verschiedenen Polarisationszuständen präpariert werden, ein absolut abhörsicherer Schlüsselaustausch möglich. Die Sicherheit beruht auf der Tatsache, dass die Zustandsmessung an einzelnen Photonen durch einen etwaigen Abhörer diesen Zustand i. a. verändert, was zwischen Sender (ALICE) und Empfänger (BOB) zu einer signifikant erhöhten Fehlerrate führt, anhand derer der Spion entlarvt werden kann [14, 15]. In einer Näherung benutzt man für ALICE bislang stark abgeschwächte Laserpulse mit einer mittleren Photonenzahl pro Puls $n \ll 1$. Allerdings leidet darunter die Übertragungsrate, da nun die meisten Pulse gar keine Photonen mehr enthalten. Hier sollte eine einfache und zuverlässige „echte“ Einzelphotonenquelle Abhilfe schaffen, die bestimmten physikalischen Anforderungen genügt. Schritte auf dem Weg zu einem solchen Kryptographie-Sender auf Festkörperrbasis werden im zweiten Teil der Diplomarbeit beschrieben.

Teil I

Ein Grundlagenexperiment zur Quantenmechanik

Kapitel 2

Theorie nichtklassischer Lichtquellen

Im einleitenden Kapitel wurden derzeit gängige Verfahren zur Erzeugung einzelner Lichtquanten erwähnt. Beinahe alle diese Experimente und vor allem auch der in dieser Arbeit genannte Effekt nutzen den spontanen Zerfall. Es soll daher zunächst möglichst allgemein das Verhalten eines nichtresonant angeregten und dann frei relaxierenden optischen Zwei-Niveau-Systems beschrieben werden. Daraus ergibt sich als natürliche Konsequenz eine besondere Photonenzustatsstatistik, die wesentlich von der klassischer Lichtquellen abweicht. Der zweite Teil dieses Kapitels beschäftigt sich mit den fundamentalen Begriffen und Zusammenhängen der Interferometrie einzelner Photonen. Eng damit verknüpft ist das Komplementaritätsprinzip, das ebenfalls Thema dieses Abschnitts sein wird.

2.1 Photonenstatistik

Einzelphotoneneffekte können nicht durch Intensitätsmessungen dargestellt werden. Die Korrelationsfunktion 2. Ordnung wird daher als Lösung eines Ratengleichungssystems abgeleitet. Um den Unterschied zu konventionellen Lichtquellen hervorzuheben, werden anschließend die Intensitätskorrelationsfunktionen thermischen, kohärenten und nichtklassischen Lichts miteinander verglichen.

2.1.1 Spontanemission und nichtklassisches Licht

Wir betrachten ein System (siehe Abb. 2.1), bestehend aus zwei Zuständen $|a\rangle$ und $|b\rangle$, das sich zur Zeit $t = 0$ im angeregten Zustand $|b\rangle$ befinden soll¹. Die An-

¹Die Darstellung der theoretischen Zusammenhänge orientiert sich z. T. an den Ausführungen in [16, 17].

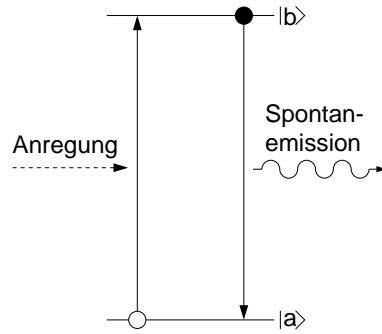


Abbildung 2.1: Anregung und spontaner Zerfall in einem Zweiniveausystem

regung von $|a\rangle$ nach $|b\rangle$ kann grundsätzlich resonant oder nichtresonant erfolgen, wobei im nichtresonanten Fall i. d. R. ein höherenergetischer Zustand angeregt wird, der anschließend schnell und strahlungslos nach $|b\rangle$ zerfällt. Denkt man sich der Einfachheit halber nun das Zwei-Niveau-System räumlich fixiert – der Rückstoß bei der Emission ist dann vernachlässigbar –, so koppelt das System an die Moden μ des Strahlungsfeldes durch Aussendung von Dipolstrahlung in den Raumwinkel Ω . Die gesamte aus Zwei-Niveau-System und Strahlungsfeld bestehende Wellenfunktion lässt sich in diesem Fall schreiben als

$$|\psi(t)\rangle = f(t)|b\rangle|0, 0, \dots\rangle + \sum_{\mu} g_{\mu}(t)|a\rangle|0, 0, \dots, 0, 1_{\mu}, 0, \dots\rangle. \quad (2.1)$$

Hier bezeichnet $|0, 0, \dots\rangle$ den Vakuumzustand des elektromagnetischen Feldes und $|0, 0, \dots, 0, 1_{\mu}, 0, \dots\rangle$ das Feld mit einem Photon in der Mode μ . Gleichung (2.1) erfüllt offenbar den Energiesatz, da die Wellenfunktion $|\psi(t)\rangle$ eine alleinige Superposition der beiden Zustände „System im angeregten Zustand und kein Photon“ und „System im Grundzustand und ein Photon“ beschreibt². Zur Zeit $t = 0$ haben die Wahrscheinlichkeitsamplituden $f(t)$ und $g_{\mu}(t)$ die Werte

$$f(0) = 1, \quad g_{\mu}(0) = 0. \quad (2.2)$$

Die zeitabhängige Schrödingergleichung liefert im Prinzip die Lösungen für die interessierenden Amplituden $f(t)$ und $g_{\mu}(t)$, die üblicherweise in der Weisskopf-Wigner-Näherung [7] angegeben werden:

$$f(t) = e^{-\Gamma t/2} \quad (2.3)$$

²Genaugenommen geht hier die sog. Drehwellennäherung („rotating wave approximation“) ein; die exakte Rechnung liefert weitere, dem Energiesatz widersprechende Mischterme, die aber in diesem Fall vernachlässigbar sind.

$$g_\mu(t) = \frac{\langle a, 0, 0, \dots, 1_\mu, 0, \dots | \hat{H}^W | b, 0, \dots \rangle e^{-i(\omega_\mu - \omega_{ba})t} - e^{-\Gamma t/2}}{\hbar \omega_\mu - \omega_{ba} + i\Gamma/2}, \quad (2.4)$$

mit der Übergangsfrequenz $\omega_{ba} \equiv \omega_b - \omega_a$. Die System-Feld-Wechselwirkung wird dabei unter Verwendung des Dipoloperators $\hat{\mathbf{D}}$ und des Feldstärkeoperators $\hat{\mathbf{E}}$ durch

$$\hat{H}^W = - \left[\hat{\mathbf{D}}^{(+)} \hat{\mathbf{E}}_{tot}^{(-)}(0) + \hat{\mathbf{D}}^{(-)} \hat{\mathbf{E}}_{tot}^{(+)}(0) \right] \quad (2.5)$$

beschrieben, wobei Plus- und Minuszeichen den positiven bzw. negativen Frequenzanteil bezeichnen. Trivialerweise ergibt sich für die Besetzungswahrscheinlichkeit $b(t)$ des angeregten Zustands

$$|f(t)|^2 = b(t) = e^{-\Gamma t} \quad (2.6)$$

Wie eine weitere kurze Rechnung schließlich zeigt, liefert der Koeffizient $g_\mu(t)$ andererseits für Zeiten $t \gg \Gamma^{-1}$ das Spektrum

$$\lim_{t \rightarrow \infty} |g_\mu(t)|^2 \propto I(\omega_\mu) = I_0(\omega_{ba}) \cdot \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{(\omega_\mu - \omega_{ba})^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}, \quad (2.7)$$

dessen Breite durch die spontane Zerfallsrate Γ gegeben ist als

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} \int d\Omega |\mathbf{D}_{ab} \mathbf{e}_\mu^*|^2 \varrho(\omega_{ba}). \quad (2.8)$$

Γ hängt damit vom Matrixelement $-\mathbf{D}_{ab} \mathbf{e}_\mu^*$ mit der elektrischen Feldstärke \mathbf{e}_μ^* und der Zustandsdichte $\varrho(\omega)$ des Strahlungsfeldes ab. Weiter bezeichnen in (2.7) $I(\omega_\mu)$ und $I_0(\omega_{ba})$ die mittlere Intensität bei der Frequenz ω_μ bzw. ω_{ba} .

Man könnte nun auf die Idee kommen, das zeitliche Verhalten von Absorption und Re-Emission eines solchen spontan strahlenden Übergangs zu analysieren, um daraus Rückschlüsse auf die Statistik der ausgesandten Lichtquanten zu ziehen. Wir denken uns dazu den Übergang beispielsweise von einem nichtresonanten Laser angeregt, um Komplikationen durch etwaige stimulierte Emission zu vermeiden. Arbeitet der Laser im kontinuierlichen Betrieb, so pumpt er über Zwischenzustände inkohärent mit einer konstanten – aber einstellbaren – Rate k_{12} das System vom Grund- in den angeregten Zustand³. Dort baut sich allmählich eine Besetzung auf, die ihrerseits mit einer Rate k_{21} wieder in den Grundzustand relaxiert⁴. Mathematisch kann dieser Sachverhalt durch eine Rategleichung für die Besetzungswahrscheinlichkeiten $a = |g_\mu(t)|^2$ und $b = |f(t)|^2$ mit konstanten Koeffizienten k_{ij} ausgedrückt werden:

$$\begin{pmatrix} \dot{a} \\ \dot{b} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_{12} & k_{21} \\ k_{12} & -k_{21} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

³Aufgrund des inkohärenten Charakters der Anregung vereinfacht sich die Beschreibung deutlich gegenüber dem kohärenten Ansatz in [3].

⁴ k_{21} entspricht der zuvor eingeführten spontanen Zerfallsrate Γ .

Als Lösung des gekoppelten linearen Differentialgleichungssystems erhält man

$$\begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} = \frac{k_{12}}{k_{12} + k_{21}} \left[\begin{pmatrix} \frac{k_{21}}{k_{12}} \\ 1 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \end{pmatrix} e^{-t/\tau_0} \right], \quad (2.10)$$

wobei die charakteristische Zeitkonstante τ_0 gegeben ist durch

$$\tau_0 \equiv \frac{1}{k_{12} + k_{21}}. \quad (2.11)$$

Die Lösungen (2.10) genügen nun einerseits den Anfangsbedingungen

$$a(t=0) = 1, \quad b(t=0) = 0, \quad (2.12)$$

wenn der Zeitnullpunkt jetzt durch die Spontanemission eines Fluoreszenzphotons *definiert* wird⁵, die das System soeben in den Grundzustand überführt hat. Andererseits zeigt die Besetzung des oberen Zustandes für große Zeiten t das erwartete Sättigungsverhalten, wonach im Fall hoher Pumpintensität die spontane Zerfallsrate k_{21} den Pump-Relaxations-Zyklus limitiert:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} = \frac{1}{k_{12} + k_{21}} \begin{pmatrix} k_{21} \\ k_{12} \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

Normiert man die Besetzung $b(t)$ des angeregten Zustands auf $\lim_{t \rightarrow \infty} b(t) = 1$, so erhält man die Korrelationsfunktion 2. Ordnung dieses Systems:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\tau/\tau_0} \quad (2.14)$$

Dieser Ausdruck kann als (normierte) bedingte Wahrscheinlichkeit dafür interpretiert werden, nach einer Zeit τ ein weiteres Photon nachzuweisen, *wenn* zur Zeit τ_0 bereits eines detektiert wurde. Die endliche Rückpumpzeit hat zur Folge, dass kurz aufeinanderfolgende Emissionsprozesse mit verminderter Häufigkeit auftreten. Insbesondere verschwindet die Wahrscheinlichkeit, zur gleichen Zeit, nämlich $\tau = 0$, mehr als ein Photon zu detektieren. Der Effekt des „photon antibunching“, also „Abstand haltender Photonen“, scheint somit aus quantenmechanischer Sicht selbstverständlich zu sein. Historisch betrachtet war dem jedoch keineswegs so. Ursprünglich wurde die Korrelationsfunktion 2. Ordnung aufgrund ihrer Messung im Hanbury-Brown-Twiss-Experiment (im weiteren z. T. mit „HBT“ abgekürzt) als zeitgemittelte Intensitätskorrelation eingeführt⁶, wobei I die Intensität und ΔI^2 deren quadratische Schwankung bezeichnet.

$$g^{(2)}(\tau) \equiv \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I \rangle^2}, \quad g^2(0) = 1 + \frac{\langle \Delta I^2 \rangle}{\langle I \rangle^2} \quad (2.15)$$

⁵In praxi durch die Detektion eines solchen Photons, was bei konstanter Lichtlaufzeit aber nichts am Sachverhalt ändert.

⁶Obwohl plausibel, kann man die Äquivalenz der so definierten Funktion mit der normierten Besetzung $b(t)$ auch streng zeigen.

Diese Definition bezieht sich auf die klassischen, kontinuierlichen Intensitäten der Wellenoptik und genügt zur Beschreibung von thermischen Lichtquellen und des kohärenten Laserfeldes. Zur Erweiterung auf quantisierte elektromagnetische Felder sind die Photonenerzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \hat{a}^\dagger und \hat{a} sowie der Teilchenzahloperator $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ zu verwenden, dessen Erwartungswert der Intensität proportional ist:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t+\tau) \hat{a}(t+\tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2}, \quad g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \bar{n}}{\bar{n}^2} \quad (2.16)$$

Dieser Ausdruck gestattet nun die Beschreibung der statistischen Eigenschaften beliebiger Lichtfelder im Photonenbild. Um die Unterschiede zu konventionellen Lichtquellen darzulegen und in diesem Zusammenhang den statistischen Aspekt elektromagnetischer Strahlung zu beleuchten, sollen im folgenden knapp die charakteristischen Eigenschaften der thermischen Lampe, eines Lasers und des Quantenemitters gegenübergestellt werden.

2.1.2 Intensitätskorrelation verschiedener Lichtquellen

Wir betrachten zunächst thermische Strahlung der Frequenz ω und Temperatur T . Dann genügt die Wahrscheinlichkeitsverteilung $P(n)$ der Photonenzahl n einer Boltzmannstatistik [17] mit mittlerer Photonenzahl \bar{n} und Schwankung Δn^2 (siehe Abb. 2.2).

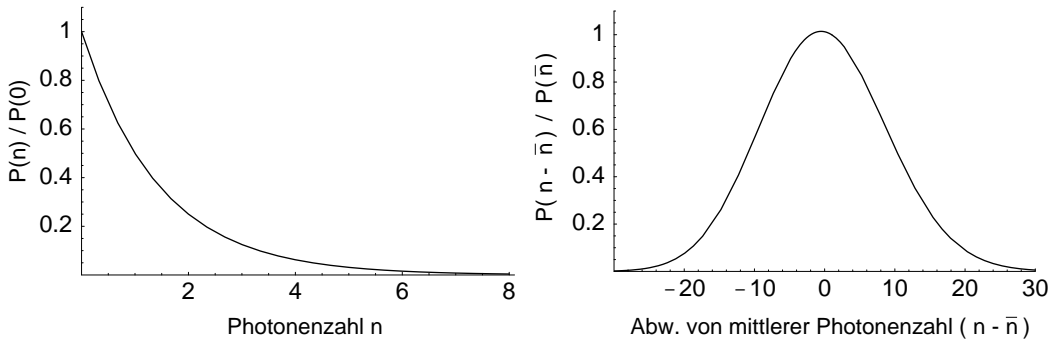


Abbildung 2.2: Photonenzahlverteilung für thermisches Licht (links) und einen Laser (rechts). Man beachte, dass die mittlere, aber nicht wahrscheinlichste Photonenzahl der thermischen Quelle in obigem Bild 1 beträgt.

$$P_{therm}(n) = \frac{\bar{n}^n}{(1 + \bar{n})^{1+n}}, \quad \Delta n^2 = \bar{n} + \bar{n}^2 \quad (2.17)$$

Gemäß (2.16) sind also wegen $g_{therm}^{(2)}(0) = 2$ eng aufeinanderfolgende Photonen besonders stark korreliert. Anschaulich gesprochen ist das auf die Intensitätsfluktuationen solcher chaotischer Quellen zurückzuführen, die ihre Ursache wiederum in der statistisch regellosen Überlagerung der verschiedenen atomaren Elementarwellen haben.

Demgegenüber treten im Laser aufgrund seiner selbststabilisierenden Funktionsweise viel kleinere Intensitätsschwankungen auf, was sich auch in der Korrelationsfunktion bemerkbar machen sollte. Beschreibt man das Laserfeld üblicherweise als kohärenten Zustand, so errechnet sich daraus die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photonenzahl als Poissonstatistik (vgl. Abb. 2.2) gemäß

$$P_{laser}(n) = e^{-\bar{n}} \frac{\bar{n}^n}{n!}, \quad \Delta n^2 = \bar{n}. \quad (2.18)$$

Einsetzen in (2.16) liefert $g_{laser}^{(2)}(0) = 1$, was einer völlig unkorrelierten Verteilung der Photonenabstände entspricht, verursacht durch die kohärente Strahlung des stimulierten Emissionsprozesses.

Betrachten wir schließlich quantisierte Lichtfelder wie z. B. einen Fockzustand $|n_0\rangle$ mit

$$P_{fock}(n) = \delta_{n,n_0}, \quad \Delta n^2 = 0. \quad (2.19)$$

Man erhält dann für $\tau = 0$ das Resultat $g_{fock}^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n} < 1$. Die klassische Korrelationsfunktion (2.15), die allein auf der Wellentheorie elektromagnetischer Strahlung basiert, erlaubt einen Wert $g^{(2)}(0) < 0$ offenbar nicht. Man spricht deshalb genau dann von „nichtklassischer Strahlung“, wenn $g^{(2)}(0) < 1$. Notwendige Voraussetzung dafür ist eine Sub-Poisson-Statistik des Lichtfeldes, in dem die Schwankungen unter dem Mittelwert liegen. Abb. 2.3 vergleicht die drei Klassen an Korrelationsfunktionen noch einmal anschaulich. Im Fall thermischer Lichtquellen fällt die Korrelationsfunktion mit einer charakteristischen Zeitkonstante τ_0 ab, die durch die endliche Kohärenzzeit der Strahlung gegeben ist. Je nachdem, welcher Mechanismus die spektrale Verbreiterung in der Quelle dominiert, folgt $g^{(2)}(\tau)$ mehr einem Gauß- oder Lorentzprofil. Die Lichtemission des idealen Lasers kann man sich dagegen als unendlich ausgedehnten Wellenzug mit konstanter Intensität vorstellen, was $g^{(2)}(\tau) = 0$ für alle Zeiten τ zur Folge hat. Beim Quantenemitter treten um $\tau = 0$ schließlich wegen des korpuskularen Charakters des Lichts Antikorrelationen auf, die auf einer Zeitskala τ_0 (der Lebensdauer der Anregung) verschwinden. Stellt man sich die von der Quelle emittierten Photonen wie an einer Schnur aufgereiht vor, so lässt sich die Statistik auch anhand von Abb. 2.4 veranschaulichen.

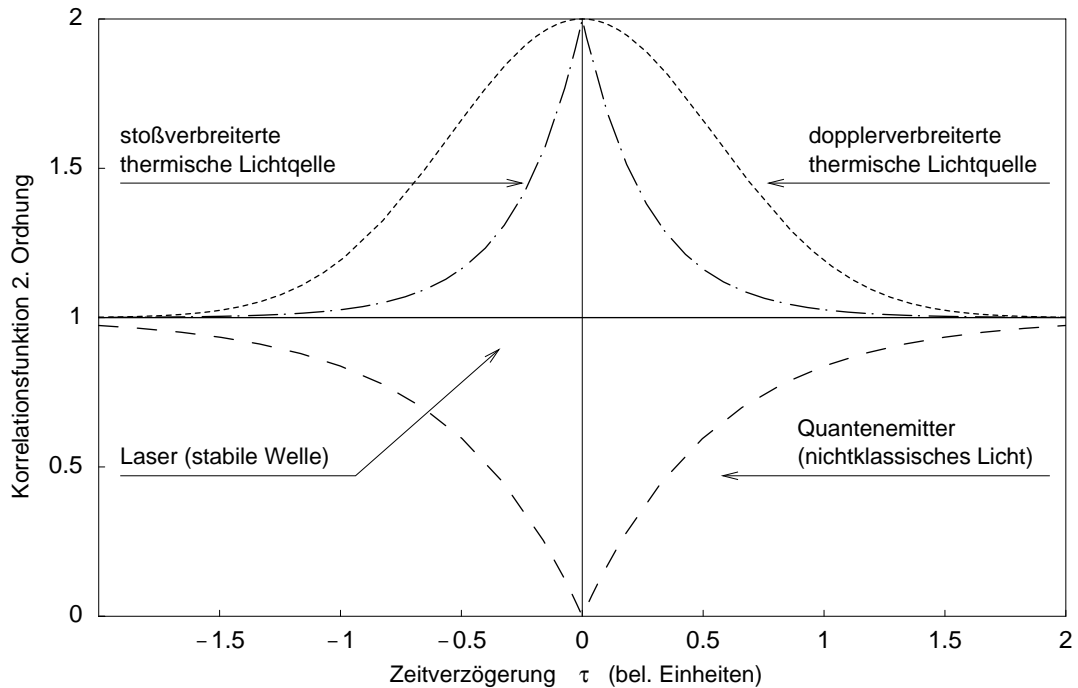


Abbildung 2.3: $g^{(2)}(\tau)$ für verschiedenartige Lichtquellen. Für klassische Quellen nimmt die Intensitätskorrelation auf einer charakteristischen Zeitskala τ_0 ab, die hier als Kohärenzzeit bezeichnet wird. Laserlicht ist völlig unkorreliert, während Quantenemitter Antikorrelation mit einer Zeitkonstante τ_0 zeigen.

2.2 Komplementarität und Interferometrie

Im vorigen Abschnitt wurde anhand des spontanen Zerfalls in einem Zwei-Zustandssystem gezeigt, dass der Effekt des Photon Antibunching rein quantenmechanischer Natur ist und klassisch nicht erklärt werden kann. Auf ein anderes mit elektromagnetischer Strahlung verknüpftes Phänomen trifft dies nicht zu. Die Interferenz von Licht lässt sich schließlich sehr bequem mit der Wellenvorstellung deuten und in Übereinstimmung mit den Beobachtungen berechnen. Hinter dem scheinbaren Widerspruch zum korpuskularen Erscheinungsbild verbirgt sich das Komplementaritätsprinzip der Quantenmechanik. Als grundlegende physikalische Gesetzmäßigkeit soll es zunächst möglichst allgemein erläutert werden, um anschließend auf die Interferenz einzelner Photonen einzugehen, anhand derer sich der Sachverhalt sehr klar illustrieren lässt.

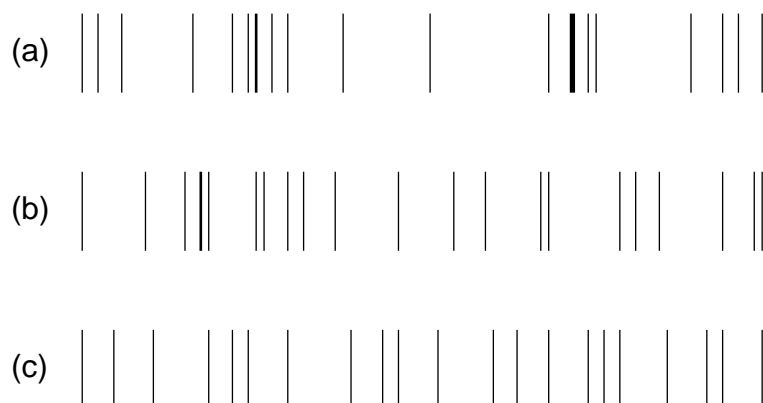


Abbildung 2.4: Darstellung der Photonenfolge für (a) eine chaotische (thermische) Lichtquelle, (b) einen Laser und (c) eine nichtklassische Lichtquelle.

2.2.1 Das Komplementaritätsprinzip

Betrachtet man im Young'schen Doppelspaltexperiment eine ebene Welle einzelner Photonen (oder anderer Teilchen ausreichender Wellenlänge), die auf eine fixierte Platte mit zwei parallelen Schlitzen fällt, so beobachtet man auf dem dahinter angebrachten Schirm ein Interferenzmuster (Abb. 2.5). Versucht man herauszufinden, durch welchen der beiden Schlitze das Photon hindurchgetreten ist, verschwindet das Interferenzmuster. Die Messung des Weges kann z. B. anhand des Impulsübertrags vom Teilchen auf die Schlitzeplatte erfolgen. Man überzeugt sich aber leicht anhand der Orts-Impuls-Unschärfe

$$\Delta x \cdot \Delta p \geq \frac{\hbar}{2}, \quad (2.20)$$

dass die damit verbundene Schwankung in der Lage der Schlitze die Interferenz zerstört. Da sich das Photon bei der Orts- oder „Welcher Weg“-Messung wie ein klassisches, lokalisierbares Objekt verhält, andererseits aber die Impulsmessung das Photon als Welle erscheinen lässt, wurde für diesen Sachverhalt der Ausdruck „Welle-Teilchen-Dualismus“ geprägt. Wie sich aber herausstellt, zeigt sich das ambivalente und scheinbar widersprüchliche Verhalten quantenmechanischer Systeme in zahlreichen weiteren Fragestellungen, wie z. B. der Drehimpulsmessung. Auf Niels Bohr geht daher der allgemeinere Begriff des „Komplementaritätsprinzips“ zurück [18]. Als tief liegendes Gesetz der Quantenmechanik besagt es, dass zwei zueinander komplementäre Observable \hat{A} , \hat{B} nicht gleichzeitig beliebig genau gemessen werden können. Komplementär sind Observable dann, wenn ihr Kommutator nicht verschwindet, sondern einer weiteren Observablen \hat{C} proportional ist. Das Produkt der Schwankungen $\Delta(A, B) \equiv \sqrt{\langle (A, B)^2 \rangle - \langle (A, B) \rangle^2}$

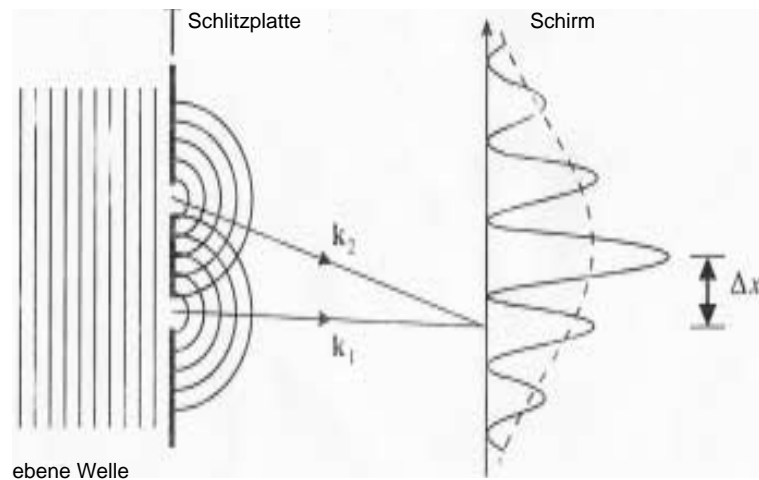


Abbildung 2.5: Der historische Doppelspaltversuch als Ausgangspunkt für die Formulierung des Komplementaritätsprinzips.

genügt dann einer Unschärferelation:

$$[\hat{A}, \hat{B}] = i\hbar\hat{C} \quad \implies \quad \Delta A \cdot \Delta B \geq \frac{\hbar}{2}\langle C \rangle \quad (2.21)$$

Da i. a. Eigenwerte bestimmt werden und deren Schwankung verschwindet, bedeutet das, dass die zur gemessenen Größe komplementäre Observable alle möglichen Werte mit gleicher Wahrscheinlichkeit annehmen kann. Offensichtlich geht an dieser Stelle die Messapparatur in die Überlegungen ein. Die Tatsache, dass die beiden Observablen nicht kommutieren, bedeutet mathematisch, dass für diese Operatoren keine gemeinsame Eigenbasis existiert, in der eine simultane Messung von Eigenwerten *beider* Operatoren mit dann verschwindender Unschärfe möglich wäre. Im Experiment hat dies zur Folge, dass keine Versuchsanordnung realisiert werden kann, die beide Größen parallel exakt bestimmt. Vielmehr muß für jede interessierende Observable ein separates Messschema eingesetzt werden, das jeweils auf die fragliche Größe zugeschnitten ist. Gibt man sich bei der Messung mit einer gewissen Schwankung $\Delta(A, B) > 0$ zufrieden, so können in den Grenzen von (2.21) natürlich auch beide Observable mit den entsprechenden Unschärfen gemessen werden. Die vorstehenden Aussagen machen deutlich, dass die Komplementarität eine im klassischen Sinn vollständige und damit deterministische Beschreibung des Mikrokosmos verbietet. In der Kopenhagener Deutung der Quantentheorie wird dieses Dilemma dadurch umgangen, dass der Realitätsbegriff auf die tatsächlichen, durch die Relation (2.21) begrenzten Beobachtungsmöglichkeiten reduziert wird. Unter dieser Einschränkung muß die quantenmechanische Beschreibung der physikalischen Realität als vollständig

betrachtet werden. Wichtig ist hierbei, dass die Unkenntnis nicht notwendig aus einer Störung des Systems im Sinn einer mechanisch verstandenen Unschärfere-lation wie im Young-Versuch resultieren muß. In der Tat wurde diese Interpre-tation vielfach vertreten. Es konnte jedoch gezeigt werden, dass die bloße Mög-lichkeit zum Auslesen der Weginformation das Interferenzmuster verschwinden lässt, ohne das System zu beeinflussen [19].

Um das Komplementaritätsprinzip in der Form des Welle-Teilchen-Dualismus des Lichts zu demonstrieren, überträgt man die obigen Aussagen auf ein In-terferometer, bestehend aus zwei Strahlteilern und Detektoren in den beiden Ausgängen [20] (siehe Abb. 2.6). Die in dieser Konfiguration auftretenden In-terferenzen messen im Prinzip die Phasendifferenz und zeigen unter Verzicht auf Weginformation die Welleneigenschaften des Photons. Um die Weginforma-tion zu erhalten, muß man „nachsehen“ und verliert dabei jede Kenntnis über die Phasendifferenz. Dazu positioniert man in jedem Ausgang des 1. Strahl-teilers (Moden 3 und 4) je einen Photodetektor. Dann registriert (bei idealer Nachweiseffizienz von 100 %) entweder Detektor 1 *oder* Detektor 2 das eine ein-gestrahlte Photon und misst damit das Amplitudenquadrat für die Detektion im entsprechenden Interferometer-Arm. Die Tatsache, dass keine Koinzidenzen auftreten, widerlegt die klassische Interpretation des Lichts als reiner Welle, da eine solche ihre Energie kontinuierlich teilen sollte. Es wäre in einem solchen Fall je nach angenommenem Absorptionsprozess mit zahlreichen Koinzidenzen oder aber mit einer vollständig verschwindenden Zählrate zu rechnen, wenn in einem semiklassischen Bild die Detektion durch einen atomaren Übergang $E = \hbar\omega$ erfolgen würde.

2.2.2 Einzelphotonen-Interferometrie

Den zweiten, komplementären Teil des Versuchs bildet also der Nachweis, dass die einzelnen Photonen wie klassisches Licht zur Interferenz gebracht werden können, wobei insbesondere der Kontrast auf konstant hohem Niveau bleibt. Die Eleganz des Experiments liegt in der Tatsache, dass Lichtquelle und Strahl-teiler vom vorhergehenden „Welcher Weg“-Experiment übernommen werden können und der Aufbau nur noch durch die restlichen Komponenten eines Mach-Zehnder-Interferometers ergänzt werden muß.

Wir betrachten ein solches Mach-Zehnder-Interferometer, bestehend aus zwei Strahlteilern „BS“, zwei Spiegeln „M“ und einem einstellbaren Phasenschieber „PS“ (Abb. 2.6). Beschränken wir uns zunächst auf den ersten Strahlteiler (für den zweiten gelten analoge Beziehungen), dann muß dort aus Energieerhaltungs-gründen für die klassischen Intensitäten $A_i^*A_i$ mit den A_i als komplexen Feldam-plituden gelten:

$$A_1^*A_1 + A_2^*A_2 = A_3^*A_3 + A_4^*A_4 \quad (2.22)$$

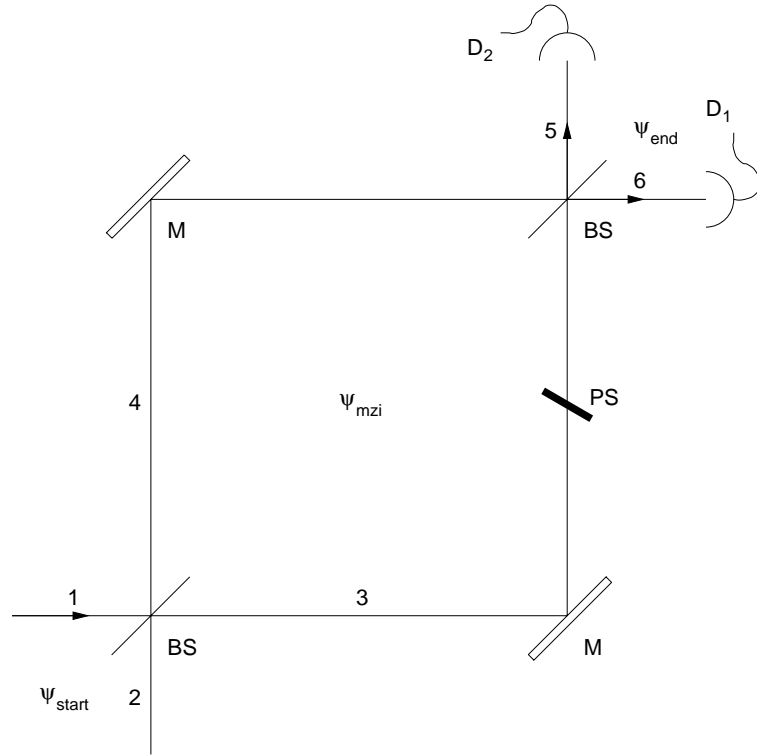


Abbildung 2.6: Zur Interferenz einzelner Photonen im Mach-Zehnder-Interferometer.

Bezeichnet man Reflexions- und Transmissionsvermögen mit r bzw. t (wobei $r + t = 1$ gilt) und berücksichtigt den Phasensprung um π bei Reflexion an *einer* Seite des Teilers, so erfüllt eine unitäre Transformation die Forderung (2.22). In Matrixform lässt sich das wie folgt schreiben:

$$\begin{pmatrix} A_3 \\ A_4 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{t} & \sqrt{r} \\ -\sqrt{r} & \sqrt{t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Gemäß dem Korrespondenzprinzip sind die klassischen Amplituden A_i und A_i^* bei der Feldquantisierung durch die Photonen-Vernichter \hat{a} bzw. -Erzeuger \hat{a}^\dagger zu ersetzen. Es gilt für die klassischen Feldstärken

$$E_i^{(+)}(\mathbf{r}, t) = F_i(\mathbf{r})e^{-i\omega t}A_i \quad \text{und} \quad E_i^{(-)}(\mathbf{r}, t) = F_i(\mathbf{r})^*e^{i\omega t}A_i^*, \quad (2.24)$$

die sich in Operatorschreibweise als

$$\hat{E}_i^{(+)}(\mathbf{r}, t) = G_i(\mathbf{r})e^{-i\omega t}\hat{a}_i \quad \text{und} \quad \hat{E}_i^{(-)}(\mathbf{r}, t) = G_i^*(\mathbf{r})e^{i\omega t}\hat{a}_i^\dagger \quad (2.25)$$

darstellen, mit i. a. verschieden normierten, aber sonst identischen Funktionen $F_i(\mathbf{r})$ und $G_i(\mathbf{r})$. Speziell suchen wir eine Beziehung, die \hat{a}_1^\dagger und \hat{a}_2^\dagger durch \hat{a}_3^\dagger und \hat{a}_4^\dagger ausdrückt. Diese erhalten wir mit der Überlegung, dass die Strahlteilermatrix U aus Gl. (2.23) gemäß $U^\dagger = U^{-1}$ invertierbar ist, zu

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_2^\dagger \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{t} & -\sqrt{r} \\ \sqrt{r} & \sqrt{t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_3^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger \end{pmatrix}. \quad (2.26)$$

Nimmt man nun an, dass sich in Mode 1 genau ein Photon befindet⁷ und über Mode 2 nur das Vakuumfeld eingekoppelt wird, schreibt sich der Anfangszustand wie folgt:

$$|\psi_{start}\rangle = |1\rangle_1|0\rangle_2|0\rangle_3|0\rangle_4 = \hat{a}_1^\dagger|0\rangle_1|0\rangle_2|0\rangle_3|0\rangle_4 \quad (2.27)$$

Damit lässt sich nun die Wirkung des Strahlteilers ermitteln. Handelt es sich wie im später beschriebenen Experiment um einen halbdurchlässigen Spiegel, so finden wir durch Anwendung von Gl. (2.26) für den Feldzustand $|\psi_{mzi}\rangle$ des Photons nach Durchtritt durch den Teiler (die Kets der Moden 1 und 2 wurden einfachheitshalber fortgelassen):

$$|\psi_{mzi}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|1\rangle_3|0\rangle_4 - |0\rangle_3|1\rangle_4) \quad (2.28)$$

Nach Passieren des ersten Strahlteilers befindet sich das Photon also in einem Superpositionszustand. Man kann daher nicht von einer Entscheidung des Photons für Mode 3 *oder* Mode 4 sprechen, vielmehr stellt sich sein Zustand nach dem Strahlteiler als Linearkombination beider Möglichkeiten dar. Diese kohärente, d. h. phasenstabile Überlagerung der Teilzustände $|1\rangle_3|0\rangle_4$ und $|0\rangle_3|1\rangle_4$ bildet die Voraussetzung für das Auftreten von Interferenzen nach der Wiedervereinigung der beiden Teilstrahlen am zweiten Strahlteiler. In Bezugnahme auf den vorigen Unterabschnitt untersuchen wir kurz, wie sich eine Messung des Amplitudenquadrats und damit des Weges auswirken würde. Wegen $r = t = 1/2$ findet man dabei das Photon mit jeweils 50% Wahrscheinlichkeit in Mode 3 oder 4. Mathematisch drückt sich der Messprozess als Zustandsänderung aus. Der Dichteoperator des ungestörten Zustands $|\psi_{mzi}\rangle$ lautet

$$\hat{\varrho}_{mzi} = |\psi_{mzi}\rangle\langle\psi_{mzi}|. \quad (2.29)$$

$\hat{\varrho}_{mzi}$ erfüllt die Bedingung $\hat{\varrho}_{mzi}^2 = \hat{\varrho}_{mzi}$, so dass es sich offenbar um einen reinen Zustand handelt. Demgegenüber nimmt $\hat{\varrho}$ im „Welcher Weg“-Experiment durch Spurbildung über das nicht beobachtete Teilsystem die Form

$$\hat{\varrho}_{WW} = \frac{1}{2} (|1\rangle_3\langle 1|_3 + |0\rangle_3\langle 0|_3) \quad (2.30)$$

⁷Im folgenden steht „Mode“ für einen der 6 Teilstrahlen in Abb. 2.6.

an, wenn nur im Arm 3 gemessen wird. Wegen $\hat{\rho}_{WW}^2 = \frac{1}{2}\hat{\rho}_{WW}$ liegt nun ein gewöhnliches statistisches Gemisch vor, gegeben durch die möglichen Resultate „Photon“ und „kein Photon“ sowie den entsprechenden 50%-igen Wahrscheinlichkeiten. Um die so beobachteten Photonen dennoch zur Interferenz zu bringen, wäre es erforderlich, einen Zustand $|\psi_{WW}\rangle$ zu finden, durch den sich $\hat{\rho}_{WW}$ analog zu $\hat{\rho}_{mzi}$ ausdrückt:

$$\hat{\rho}_{WW} = |\psi_{WW}\rangle\langle\psi_{WW}| \quad \text{mit} \quad |\psi_{WW}\rangle = \sum_n c_n |\phi_{WW}^{(n)}\rangle \quad (2.31)$$

Die c_n wären in diesem Fall die komplexen Amplituden fester Phase. Man überzeugt sich anhand $|\psi_{WW}\rangle$ in Gl. (2.31) leicht, dass $\hat{\rho}_{WW}$ aus Gl. (2.30) so nicht reproduziert werden kann. Demnach schließen sich „Welcher Weg“-Information und Interferenz gegenseitig aus.

Bisher haben wir das Photon auf seinem Weg durch das Interferometer lediglich durch den ersten Strahlteiler begleitet. Wie sich anhand des superponierten Zustandes (2.28) zeigt, werden bereits hier die Weichen auf Interferenz gestellt, die aus der grundsätzlichen Unkenntnis des vom Photon gewählten Interferometerarms resultiert. Verfolgen wir nun das Schicksal des Photons weiter. Das verstellbare Plättchen „PS“ in Arm 3 ändert die Phasendifferenz zwischen den superponierten Zuständen $|1\rangle_3|0\rangle_4$ und $-|0\rangle_3|1\rangle_4$ um einen Wert $\Delta\phi \equiv \omega\tau$. Die Zeit $\tau = \Delta L/c$ beschreibt die durch das Plättchen bewirkte Verzögerung, während ω für die Frequenz des Photons steht. Als Phasenschub-Operator definieren wir

$$\hat{T}_{PS} \equiv |1\rangle_3|0\rangle_4\langle 1|_3\langle 0|_4 + e^{i\omega\tau}|0\rangle_3|1\rangle_4\langle 0|_3\langle 1|_4. \quad (2.32)$$

Anwendung auf (2.28) ergibt den Zustand unmittelbar vor dem zweiten Strahlteiler zu

$$|\psi_{mzi}\rangle \rightarrow \hat{T}_{PS}|\psi_{mzi}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|1\rangle_3|0\rangle_4 - e^{i\omega\tau}|0\rangle_3|1\rangle_4] \quad (2.33)$$

Analog zu (2.24) findet man für die unitäre Transformation am zweiten Strahlteiler

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_3^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{t} & -\sqrt{r} \\ \sqrt{r} & \sqrt{t} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{a}_5^\dagger \\ \hat{a}_6^\dagger \end{pmatrix}. \quad (2.34)$$

Ergänzt man den neuen Zustand $|\psi_{mzi}\rangle$ durch die noch leeren Moden 5 und 6, so gilt

$$|\psi_{mzi}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{a}_3^\dagger - e^{i\omega\tau}\hat{a}_4^\dagger \right) |0\rangle_3|0\rangle_4|0\rangle_5|0\rangle_6, \quad (2.35)$$

und nach Anwendung von Gleichung (2.34) lautet der Zustand nach Passieren des Teilers wieder für $r = t = 1/2$:

$$|\psi_{end}\rangle = \frac{1}{2} [(1 - e^{i\omega\tau}) |1\rangle_5|0\rangle_6 - (1 + e^{i\omega\tau}) |0\rangle_5|1\rangle_6] \quad (2.36)$$

Auf die Faktoren $|0\rangle_3|0\rangle_4$ der jetzt leeren Moden wurde wieder verzichtet. Fragen wir nach der Wahrscheinlichkeit, das Photon beispielsweise mit Detektor 1 in Mode 6 nachzuweisen, so erhält man diese zu

$$P(\text{Photon in Mode 6}) \equiv P_6 = |\langle 0|_5 \langle 1|_6 |\psi_{end}\rangle|^2. \quad (2.37)$$

Eine kurze Rechnung liefert für P_6 als Funktion von τ

$$P_6(\tau) = \frac{1}{2} (1 + \cos(\omega\tau)), \quad (2.38)$$

was mit dem klassischen Resultat für eine monochromatische Welle übereinstimmt, sich hier jedoch als quantenmechanische Wahrscheinlichkeit ergibt. Insbesondere bleibt der als

$$V \equiv \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad \text{mit} \quad I \sim P_6(\tau) \quad (2.39)$$

definierte Interferenzkontrast bis herunter zur geringstmöglichen Intensität I , nämlich der eines einzelnen Photons, konstant gleich 1.

Bekanntlich ist die Intensität in quantenmechanischer Betrachtung dem Mittelwert des Teilchenzahloperators und dieser wiederum der Wahrscheinlichkeit P_6 proportional. Im realen Experiment ergibt sich das Interferenzmuster ferner aus dem Ensemblemittelwert vieler derartiger Einzelphoton-Interferenzen, wobei die Frequenz der Photonen einer gewissen spektralen Verteilung $\mathcal{E}(\omega)$ genügt. Man erhält dann in analoger Rechnung

$$|\psi_{end}\rangle = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}(\omega) [(1 - e^{i\omega\tau}) |1^{(\omega)}\rangle_5 |0\rangle_6 - (1 + e^{i\omega\tau}) |0\rangle_5 |1^{(\omega)}\rangle_6] d\omega \quad (2.40)$$

und mit der Orthogonalität der Basiszustände ($\langle 1^{(\omega)} | 1^{(\omega')} \rangle = \delta_{\omega, \omega'}$) für die detektierte Intensität

$$I(\tau) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{I}(\omega) (1 + \cos(\omega\tau)) d\omega. \quad (2.41)$$

Hier wurde noch die gemittelte Intensitätsverteilung $\bar{I}(\omega) = |\mathcal{E}(\omega)|^2$ eingeführt⁸. Ergebnis (2.41) steht in völliger Übereinstimmung mit dem klassischen Resultat und erlaubt eine Vorhersage des Interferenzmusters aus dem Spektrum $\bar{I}(\omega)$. Dazu definiert man einen spektralen Schwerpunkt ω_0 gemäß Skizze 2.7 zu

$$\int_{-\infty}^{\infty} \bar{I}(\omega - \omega_0) \cdot (\omega - \omega_0) d\omega = 0. \quad (2.42)$$

Transformiert man (2.41) mit $\omega \rightarrow \omega_0 + \omega$ und benutzt das Additionstheo-

⁸ $\mathcal{E}(\omega)$ stellt die Fouriertransformierte der Feldstärke $E(\vec{r}, t)$ bzgl. der Zeit dar.

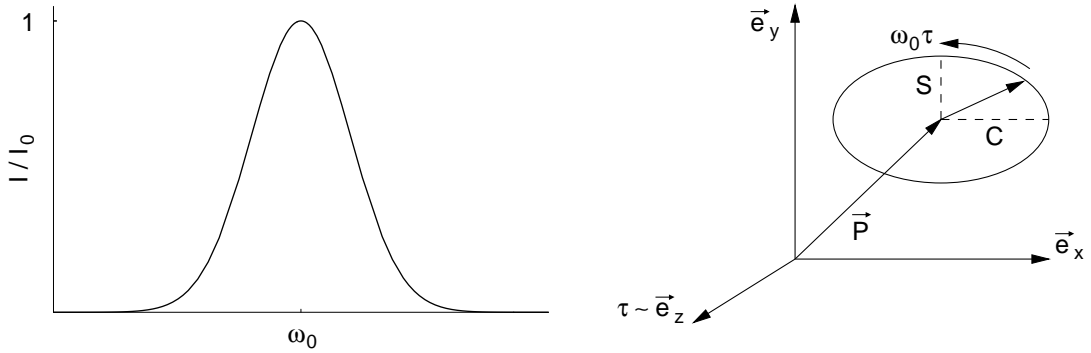


Abbildung 2.7: Links: Zur Definition des Linienschwerpunktes; Rechts: geometrische Veranschaulichung der Interferenz gemäß Gleichung (2.43).

rem $\cos(\omega_0 + \omega) = \cos(\omega_0)\cos(\omega) - \sin(\omega_0)\sin(\omega)$, erhält man schließlich den Ausdruck

$$I(\tau) = P + C \cos(\omega_0\tau) - S \sin(\omega_0\tau) \quad (2.43)$$

mit den vom Spektrum bestimmten Integralen

$$\begin{aligned} P &\equiv \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{I}(\omega) d\omega \\ C &\equiv \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{I}(\omega) \cos(\omega\tau) d\omega \\ S &\equiv \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{I}(\omega) \sin(\omega\tau) d\omega \end{aligned} \quad (2.44)$$

Wie sich zeigt, handelt es sich bei $\bar{I}(\tau)$ um eine Funktion, die mit der Trägerfrequenz ω_0 oszilliert und sich mit der Kohärenzzeit τ_c dem asymptotischen Wert P annähert. Der genaue Verlauf der Kontrastfunktion $V(\tau)$ ist gegeben durch

$$V(\tau) = \frac{\sqrt{C^2 + S^2}}{P} \quad (2.45)$$

Zum „Beweis“ betrachten wir das Problem geometrisch und ermitteln Summe bzw. Differenz der extremalen Intensitäten durch Vektoraddition (Abb. 2.7):

$$I_{max} \pm I_{min} = \left\| \vec{P} + \begin{pmatrix} C \cos(\omega_0\tau) \\ -S \sin(\omega_0\tau) \end{pmatrix} \pm \vec{P} \pm \begin{pmatrix} C \cos(\omega_0\tau + \pi) \\ -S \sin(\omega_0\tau + \pi) \end{pmatrix} \right\| \quad (2.46)$$

Mit der üblichen Definition der euklidischen Norm verifizieren wir dann das gewünschte Ergebnis. Berechnet man $V(\tau)$ für verschiedene Modellspektren, so erscheint die Kontrastfunktion im Prinzip als die Fouriertransformierte des

Spektrums. Diese Tatsache macht Interferometer dieser Art für vielfältige Anwendungen nicht nur in der Quantenoptik, sondern auch in der hochauflösenden Spektroskopie interessant.

Kapitel 3

Realisierung des Experiments

Nach den recht abstrakten Ausführungen des vorangegangenen Theorieteils befasst sich das folgende Kapitel nun mit der konkreten Umsetzung der Einzelphotoneninterferometrie ins Experiment. Das beinhaltet zunächst die nichtklassische Lichtquelle selbst, die aus einem mittels konfokaler Mikroskopie adressierten NV-Zentrum in Diamant besteht. Aufbau und Funktion dieser Quelle wurden bereits in [10] ausführlich beschrieben und sollen hier nur kurz zusammengefasst werden. Dem Mach-Zehnder-Interferometer einschließlich seiner spezifischen Optik, der Stabilisierung und der Detektoren wird dagegen mehr Aufmerksamkeit gewidmet. Das gleiche gilt für die messtechnischen Verfahren zum Nachweis der Interferenz und des „photon antibunching“, die den dritten und letzten Abschnitt dieses Kapitels bilden.

3.1 NV-Zentren im konfokalen Mikroskop

Um den geplanten Versuch zur Einzelphotoneninterferenz erfolgreich und relativ einfach durchführen zu können, ist zunächst eine stabile und schnell verfügbare Quelle erforderlich. Wie schon in der Einführung erwähnt, vereinen die fluoreszierenden NV-Zentren in Diamant diese Eigenschaften in vorzüglicher Weise. Abb. 3.1 zeigt die räumliche Struktur eines solchen Defekts, bestehend aus einem substitutionellen Stickstoffatom in Nachbarschaft einer Fehlstelle. Eine solche Konfiguration erweist sich als außerordentlich beständig, da sie eine geringere potentielle Energie besitzt als ihre getrennten Einzelbestandteile (Selbst die Fehlstelle beginnt erst oberhalb von 500°C zu wandern). Daneben ist ein vereinfachtes Niveau-Schema des NV-Zentrums dargestellt. Optische Anregung und Fluoreszenzzerfall erfolgen zwischen den Niveaus 1 und 2, während der metastabile Zustand 3 die Rolle einer „Ablage“ spielt, deren Existenz sich in der Photonenstatistik bemerkbar macht (siehe Abschn. 4.2.3). Um das NV-

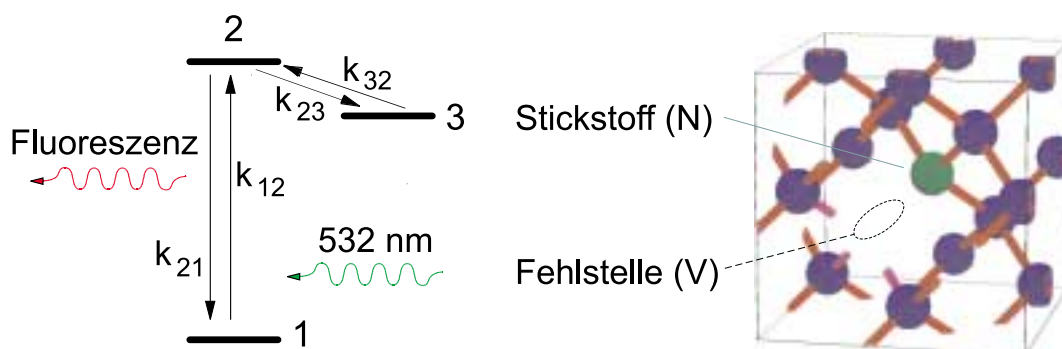


Abbildung 3.1: Struktur des NV-Zentrums in Diamant, links ein vereinfachtes Energieniveau-Schema, rechts die räumliche Anordnung im Kristallgitter, die umgebenden C-Atome sind dunkel gezeichnet.

Zentrum nun als Einzelphotonenquelle nutzen zu können, wird das in [10] aufgebaute konfokale Mikroskop eingesetzt. Dessen wesentliche Komponenten und ihre Anordnung sind aus Abb. 3.2 ersichtlich. Ein durch Frequenzverdopplung auf 532 nm emittierender Nd:YVO₄-Laser im cw-Betrieb mit maximal etwa 90 mW Ausgangsleistung dient zur Anregung. Die Einkopplung des Laserstrahls in die Objektivoptik erfolgt dabei über einen dichroitischen Spiegel, der einerseits das grüne Laserlicht weitgehend reflektiert und andererseits den Großteil des roten Fluoreszenzlichts durchlässt. Den geringen transmittierten Bruchteil des grünen Strahls bildet eine Linse auf die Photodiode D_{photo} ab (siehe Abb. 3.2). Einerseits wird so mittels Rückkopplung die Ausgangsintensität des Lasers stabilisiert und andererseits die bequeme Bestimmung der gerade eingestellten Leistung ermöglicht. Abb. 3.3 zeigt den Verlauf der Laserausgangsleistung P_{laser} als Funktion der Diodenspannung U_{photo} . Die wirkliche am Ort des NV-Zentrums herrschende Leistung liegt aufgrund diverser Reflexionsverluste etwas niedriger.

Kehren wir zurück zum eigentlichen Mikroskop. Ein Hochaperturobjektiv (NA=0,85) fokussiert den Laserstrahl auf das NV-Zentrum im $0.5 \times 0.5 \times 0.25$ mm großen Diamant, der mittels eines Piezotisches in xy- sowie eines Schrittmotors in z-Richtung positioniert werden kann¹. Die erreichbare Stellgenauigkeit beträgt dabei für die Piezoeinheit wenige 10 nm und für den Schrittmotor ca. 500 nm optische Weglänge². Das Fluoreszenzlicht wird sodann konfokal ausge-

¹Hier und im folgenden bezeichnet „z“ die Richtung der optischen Achse und „xy“ die dazu senkrechte Ebene.

²Wegen des Brechungsindex beträgt die optische Weglänge im Kristall das 2,4-fache der geometrischen Verschiebung in z-Richtung.

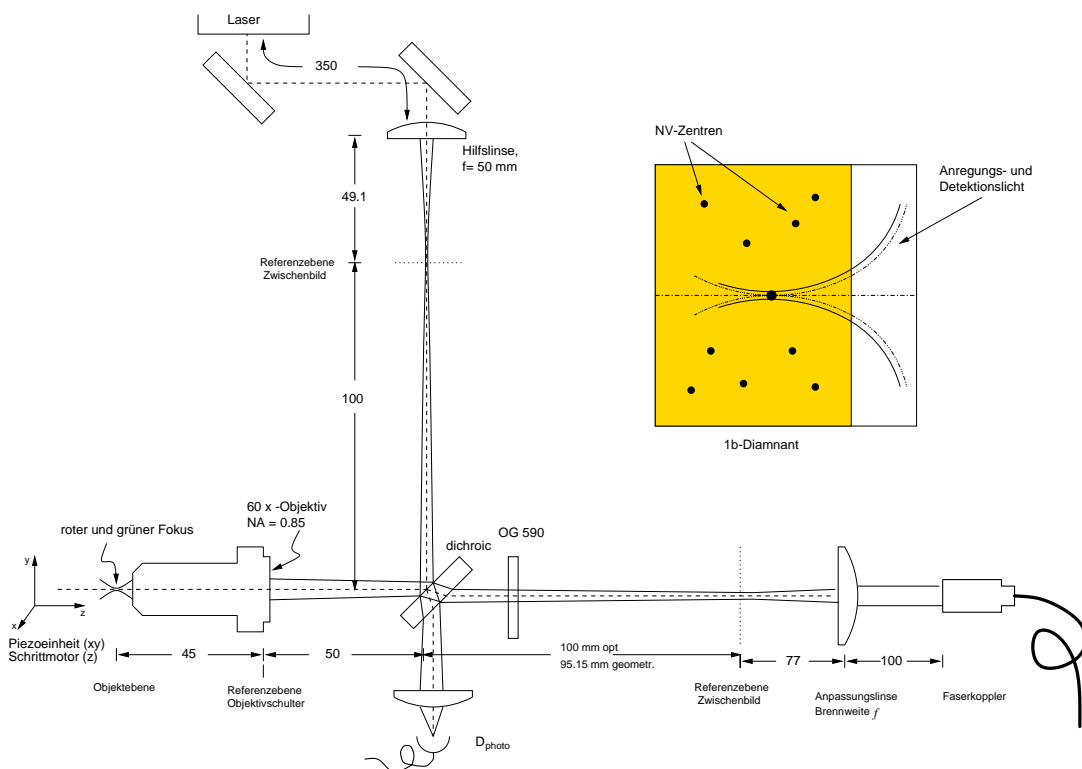


Abbildung 3.2: Komponenten und Abmessungen des konfokalen Mikroskops, der Piezotisch samt Schrittmotor zur Positionierung des Diamanten sind nicht eingezeichnet.

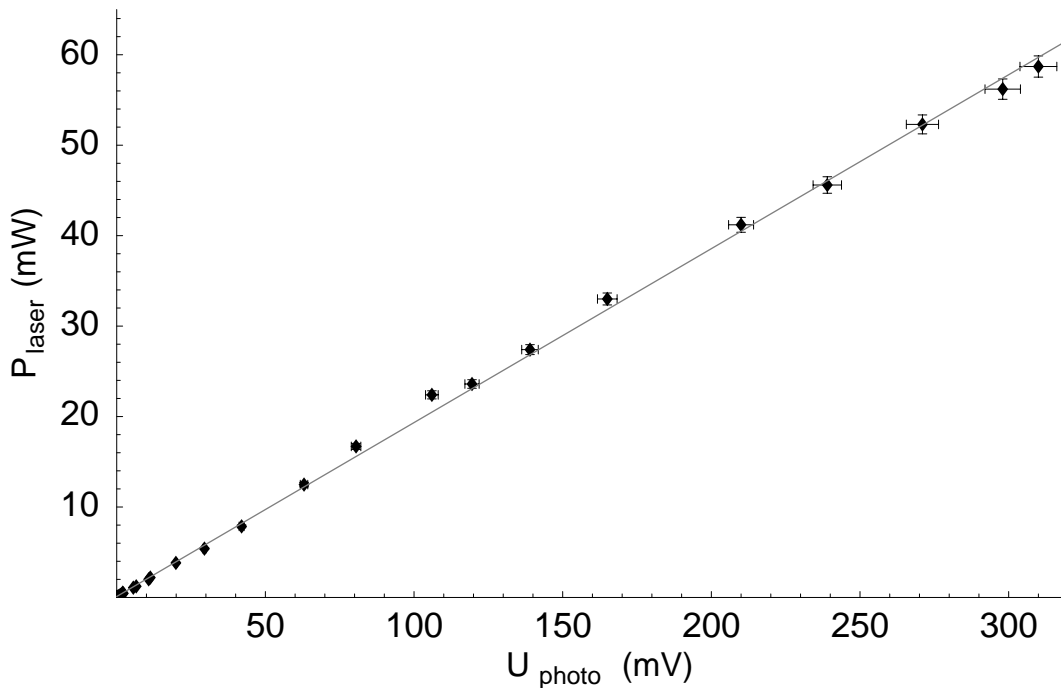


Abbildung 3.3: Laserleistung an der Mikroskopschulter als Funktion der Photo-Spannung hinter dem Dichroit, die durchgezogene Kurve beschreibt einen linearen Fit an die Messpunkte.

koppelt, per Dichroit und nachgeschaltetem Farbfilter (OG 590) vom grünen Laserlicht „gereinigt“ und via Einmoden-Glasfaser den Detektoren zugeführt, wobei trotz konfokaler Optik stets noch ein mit der Anregungsleistung zunehmender Anteil des unerwünschten Raman-Streulichts aufgesammelt wird. Die Rolle der sonst üblichen Lochblende übernimmt in diesem Aufbau der 5 μm weite Glasfaserkern. Im übrigen unterdrückt die Einmoden-Glasfaser auch sehr wirkungsvoll das störende Raumlicht, so dass das Mikroskop ohne zusätzlichen Lichtschutz auskommt.

Man erreicht mit diesem Aufbau schließlich eine räumliche Auflösung von 0,5 bis 0,6 μm in xy -Richtung und ca. 2,5 μm längs der z -Achse. Dies reicht aus, um in den verwendeten 1b-Diamanten (zur Typenbezeichnung „1b“ siehe Kapitel 5) einzelne NV-Defekte zu detektieren. Ein gewisses Problem stellt die geringe Aufsammelleffizienz der Vorrichtung dar, die zu einem großen Teil auf der schlechten Auskopplung der Fluoreszenzphotonen aus dem Diamant beruht und in [11] zu etwa $1,5 \cdot 10^{-4}$ bestimmt wurde. Dies führt zu relativ langen Messzeiten im HBT-Experiment und etwas verschlechtertem Signal-Rausch-Verhältnis.

3.2 Aufbau des Interferometers

NV-Zentren stellen, wie sich zeigt, die einzelnen Photonen sehr zuverlässig zur Verfügung. Der folgende Abschnitt beschreibt nun detailliert die experimentelle Implementierung des Mach-Zehnder-Interferometers und dessen Betrieb. Zunächst stehen optischer Aufbau, Eigenschaften der Detektoren und die Armlängen-Stabilisierung zur Diskussion. Vor allem letztere hat in vielen Interferenzexperimenten wie auch in diesem die größten Probleme bereitet und es gilt ihr deshalb ein besonderes Augenmerk.

3.2.1 Optik

Gemäß den Ausführungen im zweiten Kapitel soll das Mach-Zehnder-Interferometer speziell dazu dienen, die von der Quantentheorie postulierte Einzelphoton-Interferenz zu demonstrieren. Um sicher zu stellen, dass, wenn überhaupt, nur Einzelphoton-Interferenzen auftreten können, genügt es, die Abmessungen des Interferometers ausreichend klein zu wählen. Setzt man nämlich für die Laufzeit eines Photons durch die Interferometerarme der Länge L elementar $\Delta t = \frac{L}{c}$ und bezeichnet den Minimalabstand aufeinanderfolgender Photonen mit τ_{crit} , so erhält man als hinreichende Bedingung

$$L \leq c \cdot \tau_{crit}. \quad (3.1)$$

Der zeitliche Abstand τ_{crit} kann präzise definiert werden als das Zeitintervall $\tau(P)$, innerhalb dessen mit einer gewünschten Sicherheit maximal ein Photon nachgewiesen wird. Für eine grobe Abschätzung der erforderlichen Armlänge wurden frühere Messungen der Photonenstatistik von NV-Zentren herangezogen. Da die Korrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ gerade die Wahrscheinlichkeit beschreibt, nach einer gewissen Zeit τ ein zweites Photon zu detektieren, ergibt sich τ_{crit} aus dem Fit der Messkurve in Abhängigkeit von $g^{(2)}(\tau)$ und P :

$$1 - P = f(g^{(2)}(\tau_{crit})) \quad (3.2)$$

Konkret interessiert wegen des größeren mittleren Abstandes der Photonen³ besonders der Fall niedriger Anregungsleistung, für den eine solche $g^{(2)}(\tau)$ -Messung in Abb. 3.4 zu sehen ist. Im Experiment war die optische Armlänge durch die Abmessungen der Komponenten nach unten auf 39 cm limitiert, woraus sich nun umgekehrt nach den Gleichungen (3.1) und (3.2) τ_{crit} zu 1.3 ns ergibt. Über die Definition von $g^{(2)}(\tau)$ schätzt man daraus die Sicherheit, jeweils nur ein Photon im Interferometer zu haben, nach Abzug der Hintergrundstrahlung zu ca.

³Auf den Zusammenhang zwischen Pumprate und Photonenstatistik wird in Abschnitt 4.2 eingegangen.

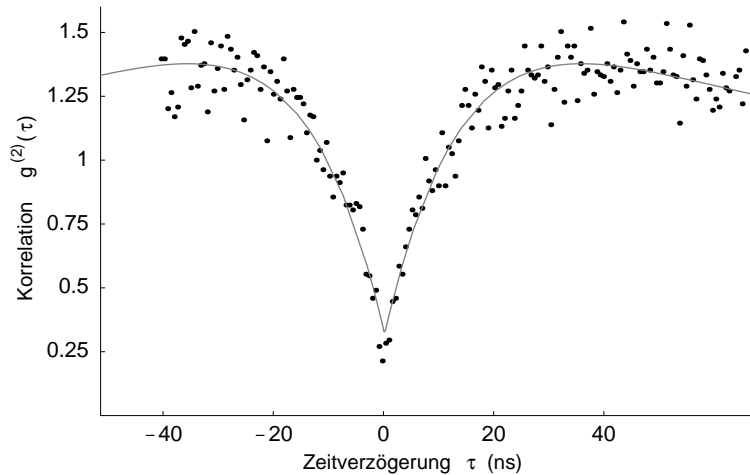


Abbildung 3.4: Frühere $g^{(2)}(\tau)$ -Messung im Grenzfall sehr niedriger Anregungsintensität zur Bestimmung der Interferometer-Armlänge

99,9% ab. Auf die Berechnungsmethode soll an dieser Stelle nicht eingegangen werden, da diese im Zusammenhang mit den eigentlichen Messungen (Abschn. 4.2) erläutert wird.

Unter dieser Randbedingung kann nun die Anordnung der verschiedenen optischen Komponenten geplant werden. Aus praktischen Gründen werden Mach-Zehnder-Interferometer oft nicht in der in Kapitel 2 dargestellten Weise mit je 2 Strahlteilern und Spiegeln realisiert, sondern in einer physikalisch äquivalenten Konfiguration. Dabei wird nur ein Strahlteiler benötigt, durch den das Licht zweimal hindurch tritt. Die hierfür erforderliche Umlenkung des Strahls übernehmen zwei Retroprismen (siehe Abb. 3.5). Diese an ein Michelson-Interferometer erinnernde Anordnung bietet einen wesentlichen Vorteil: Es lässt sich nämlich die Phasendifferenz sehr einfach durch Variieren einer Armlänge z. B. mittels eines Piezokristalls verändern. Dies ist ja erforderlich, um die Phase einerseits gegen ungewolltes Driften zu stabilisieren (vgl. Abschn. 3.2.2) und andererseits zur Messung des Interferenzmusters bewusst zu ändern (Absch. 3.3.1). Zu diesem Zweck bedient man sich eines durch einen cw-Laser erzeugten Stabilisierungsstrahls, der *unterhalb* des eigentlichen Messstrahls dieselbe Anordnung aus Strahlteiler und Prismen durchläuft. (in Abb. 3.5 versetzt und strichliert dargestellt).

Bevor nun mit dem Aufbau des Interferometers begonnen wird, muß noch geklärt werden, wie die Modenanpassung des aus der Faser austretenden Fluoreszenzlichts erfolgen soll. Letztlich steht man vor dem Problem, die stark divergente TEM_{00} -Mode des Gaußschen Strahls am Ende der Einmodenfaser auf die

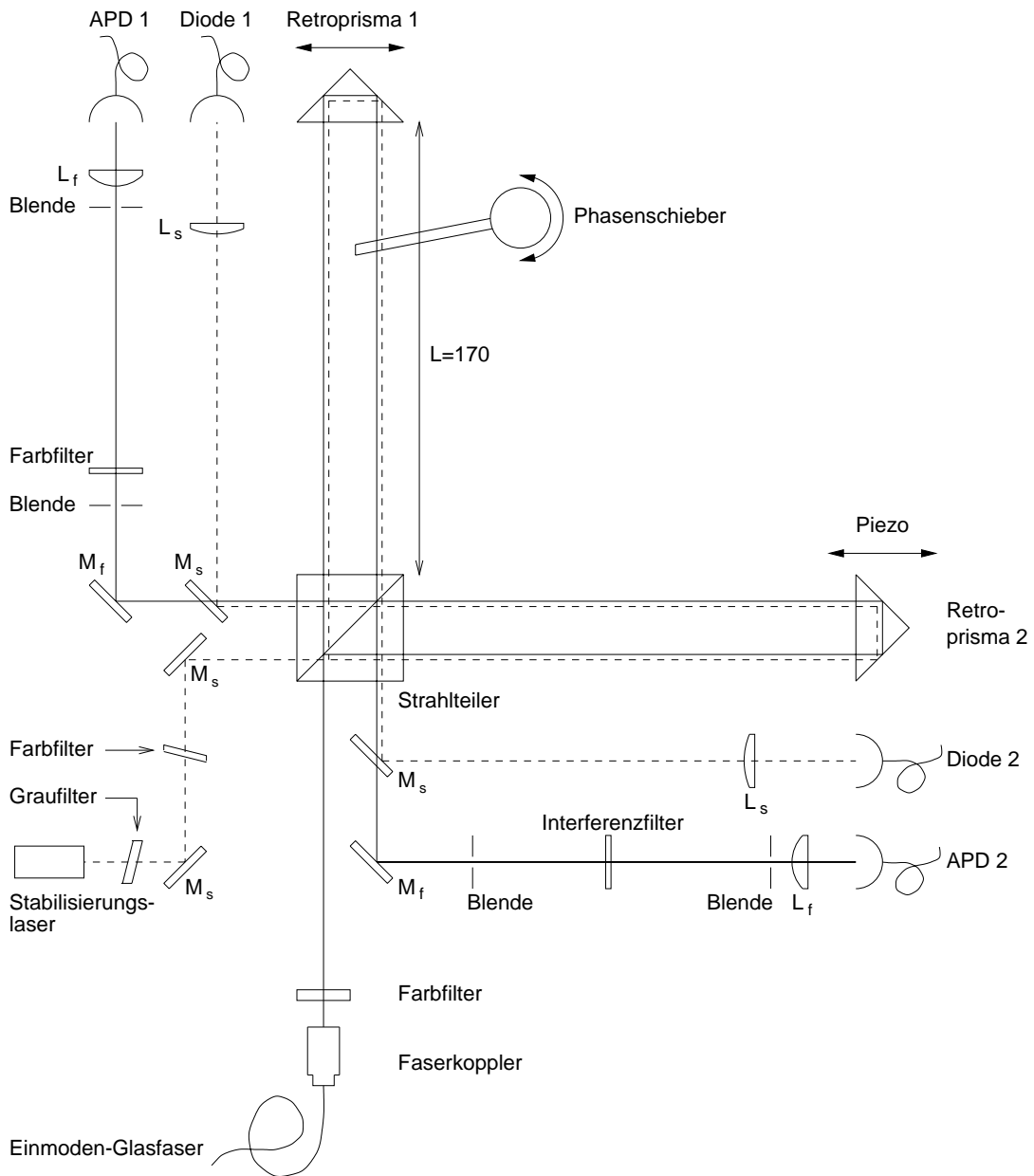


Abbildung 3.5: Der Aufbau des Mach-Zehnder-Interferometers in nicht ganz maßstabgetreuer Abbildung. Am Strahlteiler wird das über eine Glasfaser eingekoppelte Licht des NV-Zentrums in die Arme 1 und 2 transmittiert bzw. reflektiert und nach Umlenkung durch die Retroprismen an den Ausgängen phasenstabil überlagert. Die APD's 1 und 2 detektieren schließlich die interferierenden Photonen.

500 μm große Detektorfläche der Avalanche-Photodioden (APD 1 und APD 2 in Abb. 3.5) abzubilden. Auf dem Weg dorthin durchläuft das Licht eine Wegstrecke von ungefähr einem 1 Meter. Die genauen Weglängen insbesondere der interferierten Strahlen vom Strahlteiler bis zu den Detektoren können aus praktischen Gründen vorab nur grob geschätzt werden. Es erschien daher sinnvoll, den Strahl mit Hilfe eines in allen drei Raumrichtungen justierbaren Faserkopplers (Typ FC220, Thorlabs) parallel auszukoppeln. Man erhält so einen Strahldurchmesser von etwa 2 mm. Die APD-Detektormodule können dann frei an passenden Stellen positioniert werden, wenn mittels vorgeschalteter 50 mm-Linsen „ L_f “ die Parallelstrahlen auf die Detektorflächen fokussiert werden.

Nach diesen grundsätzlichen Überlegungen kann nun die eigentlichen Montage beginnen. Zweckmäßig beginnt man dabei mit dem Faserkoppler, wobei die Strahlrichtung wie üblich entlang einer Lochreihe des optischen Tisches verläuft. Die Höhe sollte gerade so gross gewählt werden, dass die später einzubauende Rotationsstufe mitsamt Glasplättchen für den Phasenschieber (vgl. Abschn. 3.2.2) noch unterhalb des Messstrahls zu liegen kommt. Andererseits erschwert ein zu hoher Strahlverlauf die bei Experimenten mit Einzelphotonen notwendige Abdeckung des Aufbaus, sodass schließlich 146 mm Strahlhöhe passend erschienen. Als zweites Element wird der nichtpolarisierende 50/50-Strahlteiler eingebaut; nichtpolarisierend, weil andernfalls etwaige natürliche oder von der Faser verursachte Polarisation Einzelphoton-Interferenzen i. a. verhindern würde. Die Position ergibt sich daraus, dass zwischen Faserkoppler und Strahlteiler noch Platz für ein Filter bleiben sollte. Da durch den 20×20 mm großen Würfel in jeder Richtung insgesamt vier Strahlen hindurchtreten (jeweils eintretender und von den Retroprismen reflektierter Mess- und Stabilisierungsstrahl), muß auf eine günstige Anordnung der Strahlen bzgl. der Würfeloberfläche geachtet werden. Abb. 3.6 zeigt die Aufteilung schematisch. Zur Justage montiert man den Strahlteiler auf einen in zwei unabhängigen Raumrichtungen justierbaren Tisch, mit dem die Ausrichtung der Teilstrahlen wie in Abb. 3.5 erfolgt. Faserkoppler und vor allem der Strahlteiler als Dreh- und Angelpunkt des ganzen Aufbaus sollten anschließend nicht mehr verstellt werden. Besondere Sorgfalt verlangt der nun folgende Einbau der Retroprismen. Dies deshalb, weil von ihrer Justierung der Interferenzkontrast und damit die optische Güte der Apparatur abhängt. Die Prismen werden verstellbar auf Mikrometerschlitten mit einer manuellen Stellgenauigkeit von ca. 2 μm montiert, und zwar einmal parallel und einmal senkrecht zur jeweiligen Strahlrichtung. Der senkrecht zum Strahl montierte Schlitten liefert einen zusätzlichen Freiheitsgrad für die Feinjustage (Abstand der ein- und auslaufenden Parallelstrahlen), während der in Strahlrichtung ausgerichtete Verschiebetisch zum genauen Abgleich der Armlängen dient und überdies den Piezoaktor aufnimmt. Aus dem Gesagten ergibt sich, dass die Verschiebetische möglichst genau senkrecht zur bzw. in Strahlrichtung ausge-

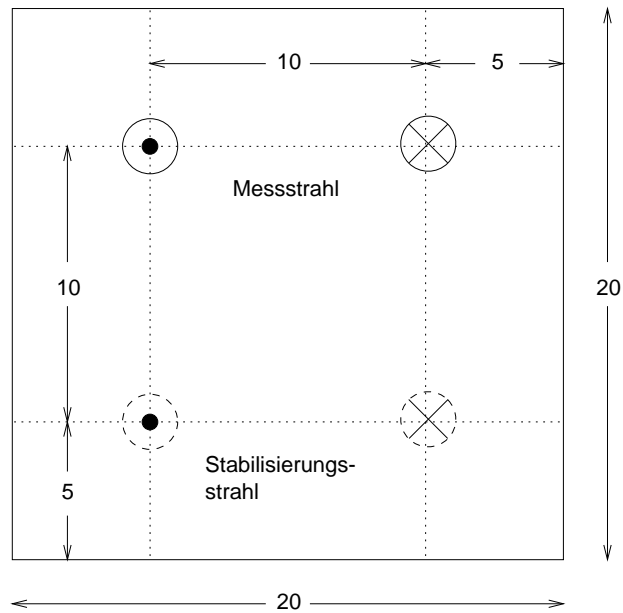


Abbildung 3.6: Anordnung der Mess- und Stabilisierungsstrahlen auf einer Oberfläche des Strahlteilerwürfels, alle Angaben in mm.

richtet sein müssen, da sonst erstens die Freiheitsgrade für die Feineinstellung nicht mehr voneinander unabhängig sind und zweitens sich beim Durchfahren des einen Prismas mittels Piezoaktor der Interferenzkontrast schon allein aufbaubedingt ändern würde. Schließlich werden noch zwei kleine Auskoppelspiegel „ M_f “ benötigt, da aus Platzgründen die APD-Detektoren nicht unmittelbar hinter die beiden Ausgänge des Strahlteilers gesetzt werden können. Mit Hilfe eines 670nm-Diodenlasers⁴ können nun die Teilstrahlen aus Arm 1 und 2 überlagert werden. Aufgrund der relativ großen Kohärenzlänge eines Lasers genügt es dazu, die Armlängen vorläufig geometrisch auf den Millimeter genau abzugleichen. Es empfiehlt sich für die Grobjustage, den Parallelstrahl in einem Ausgang des Interferometers mit einer Linse aufzuweiten und auf eine weit entfernte Wand zu projizieren. Durch Anlegen eines geeigneten Dreiecksignals an den Piezoaktor ändert sich die Weglängendifferenz periodisch. Das Interferenzmuster kann nun mit Hilfe der Schlitten und Prismen-tische, für die sich im übrigen doppelgängige Schrauben empfehlen, visuell auf maximalen Kontrast eingestellt werden. Zur Feineinstellung benötigt man eine Photodiode im anderen Ausgang. Auf dem Oszilloskop beschreibt deren Signal eine Sinusschwingung und anhand der Minima

⁴handelsübliche HeNe-Laser eignen sich nicht für den Feinabgleich mit der Photodiode, da mehrere Moden emittiert werden und der Interferenzkontrast daher etwas schwankt.

(nicht Maxima!) lässt sich sehr genau der Kontrast optimieren. Testmessungen nach Abschluss aller Aufbauarbeiten ergaben

$$V_{\text{Diodenlaser}} \simeq 97,5\%. \quad (3.3)$$

3.2.2 Stabilisierung

Entsprechend der Intention des Experiments sollen mit ein und demselben Aufbau sowohl Messungen der Photonenstatistik des aus dem Diamant austretenden nichtklassischen Fluoreszenzlichts erfolgen als auch Interferenzen desselben sichtbar gemacht werden, um so das Komplementaritätsprinzip zu veranschaulichen. Dazu ist es einerseits erforderlich, die Phasendifferenz zwischen beiden Armen über mehrere Stunden oder Tage hinweg stabil zu halten und diese andererseits aber auch kontrolliert variieren zu können. Der letzte Punkt betrifft die Interferenzmessung und soll daher erst in Abschnitt 3.3.1 zur Sprache kommen, obgleich sie auf den selben Regelkreis zurückgreift, der auch für die Stabilisierung benutzt wird.

Die optischen Bestandteile der Stabilisierung sind wiederum Abb. 3.5 zu entnehmen. Benutzt wird ein frequenzverdoppelter Nd:YVO₄-Laser ($\lambda = 532 \text{ nm}$) mit 3 mW Ausgangsleistung. Die interferierenden Teilstrahlen werden über Spiegel M_s ausgekoppelt und über Hilfslinsen L_s auf Photodioden D_1 und D_2 fokussiert. Das durch die aktuelle Phasenlage des Interferometers gegebene Differenzsignal der Dioden wird elektronisch verstärkt und an den Piezokristall weitergegeben, der die Phasendrift zu kompensieren versucht. Im einzelnen subtrahiert die aus IC 1 bestehende Eingangsstufe der in Abb. 3.7 abgebildeten Schaltung die beiden Photospannungen voneinander, vergleicht im Komparator (IC 2) den erhaltenen Ist-Wert mit dem Soll-Niveau von 0 V und bildet schließlich im Integrator das Fehlersignal, das verstärkt durch IC 5 den Piezoaktor ansteuert. Bevor nun die I- und P-Anteil sowie der Offset des Fehlersignals eingestellt werden können, gilt es sich zu vergewissern, dass die hochempfindlichen APD-Detektoren den vergleichsweise hellen Stabilisierungsstrahl nicht „sehen“. Ursprünglich sollte je ein Farbfilter RG 610 die APD-Module vor grüner Streustrahlung schützen. Wie sich aber zeigte, waren im Stabilisierungsstrahl zusätzlich ein Graufilter der Transmission $T=0,5 \%$, ein Farbfilter vom Typ BG 39 und für das eigentliche Interferometer knapp eingestellte Blenden (vgl. Abb. 3.5) nötig, um die durch die Stabilisierung verursachte zusätzliche Zählrate auf $r \leq 10 \text{ s}^{-1}$ zu senken. Interessanterweise waren letztere Maßnahmen nicht etwa deshalb erforderlich, weil das RG 610 das 532nm-Licht unzureichend abgeschirmt hätte. Vielmehr fluoreszierten erstens die Filter RG 610 unter grüner Bestrahlung breitbandig im roten Spektralbereich und zweitens leuchtete die Pumpdiode des Nd:YVO₄-Lasers auf der Wellenlänge $\lambda=808 \text{ nm}$ ungewöhnlich

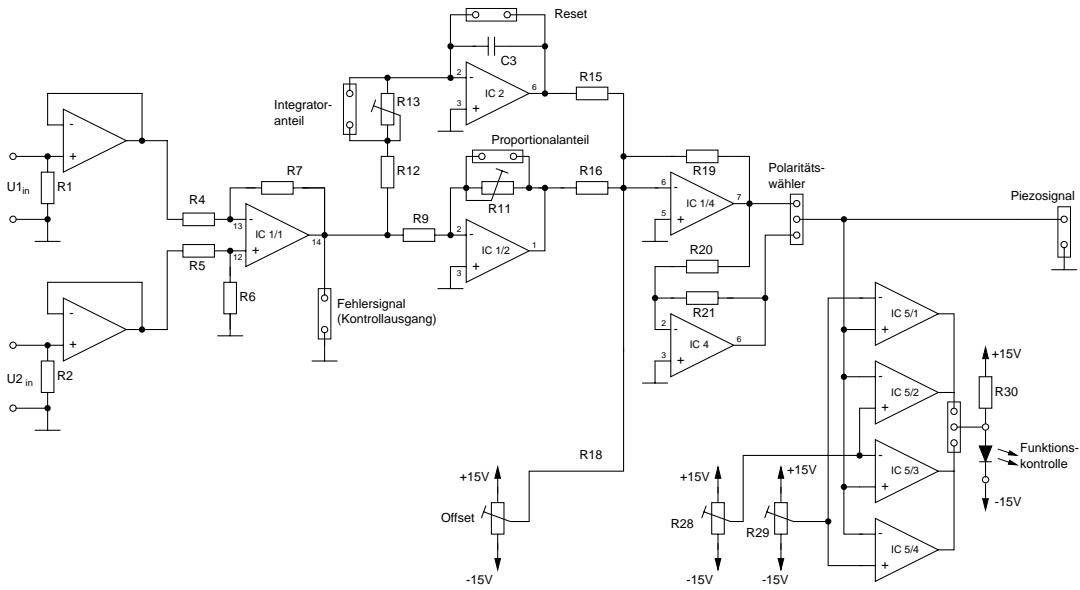


Abbildung 3.7: Regelungsschaltung zur MZI-Stabilisierung

stark durch (zum Phänomen dieser Emission vgl. Abschn. 6.2). Auf den Spektren in Abb. 3.8 sind die beiden Effekte dargestellt. Nach diesen Vorarbeiten können die elektronischen Komponenten der Regelung aufeinander abgestimmt werden. Entsprechend der nun hauptsächlich durch das Graufilter in den μW -Bereich gesunkenen Intensität muß die Stabilisierung besonders empfindlich ausgelegt werden. Wie man leicht erkennt, hängt die das Fehlersignal bestimmende Differenz der Photospannungen linear vom Kontrast V_s ab:

$$U_1 = \frac{1}{2} + \frac{\Delta U}{2} \cos(\varphi + \varphi_0), \quad U_2 = \frac{1}{2} + \frac{\Delta U}{2} \sin(\varphi + \varphi_0), \quad (3.4)$$

sodass mit $U_D \equiv U_1 - U_2$ und $V_s \equiv \frac{U_{i,max} - U_{i,min}}{U_{i,max} + U_{i,min}}$ folgt:

$$U_D(V_s) = \frac{V_s}{2} [\cos(\phi) - \sin(\phi)] \quad (3.5)$$

Im Experiment betrug der Kontrast des grünen Strahls nach optimaler Justage durch die beiden Einkoppelspiegel 85 bis 90%. Der Strom durch die Photodioden wurde über $1\text{ M}\Omega$ abgegriffen, so dass sich auch bei diesen geringen Lichtleistungen ein Spannungsabfall von immerhin 400 mV ergab. Wie sich ferner herausstellte, ist es für einen stabilen Betrieb der Regelung notwendig, den P-Anteil der Schaltung fast auf 0 zu stellen, wie dies schon Markus Weber in seiner Diplomarbeit erwähnt [21]. Anders als dort bereitet es jedoch keine Probleme,

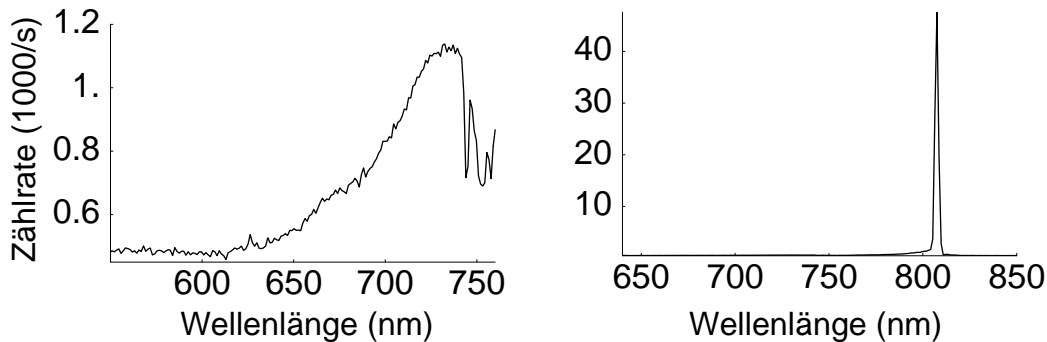


Abbildung 3.8: Spektren der 532 nm-Strahlung nach Durchtritt durch das Farbfiler RG 610; links ein Teil der Eigenfluoreszenz des Filters, rechts die 808nm-Linie der Pumpdiode (man beachte die Zählraten!)

den Integrator zwecks besserer Empfindlichkeit sehr „fink“ zu betreiben, da Eigenresonanzen eventuell durch den hohen Widerstand gefiltert werden und sich daher nicht bemerkbar machten. Schließlich ist noch der Spannungsbereich zu bestimmen, innerhalb dessen der Piezo betrieben werden soll. Wünschenswert ist ein möglichst großer Hub von mindestens $15\ \mu\text{m}$ zum Durchfahren der Interferenzen (siehe Absch. 3.3.1). Daher fiel die Wahl auf einen 28 mm langen 150 V-Piezoaktor mit $15\ \mu\text{m}$ Hub beim Betrieb mit bis zu $100\ \text{V}$ ⁵. Wählt man das Intervall der am Schaltungsausgang entnommenen Regelspannung zu $\pm 10\ \text{V}$, so läßt sich mittels eines nachgeschalteten Hochspannungsverstärkers der Aktor im angestrebten Spannungsbereich etwa zwischen $-7\ \text{V}$ und $100\ \text{V}$ ansteuern. Wie längere Testläufe zum Abschluss zeigten, war damit trotz der schwachen Eingangssignale eine sehr gute Phasenstabilität erreicht, die bei niedriger Raumtemperatur und Lichtschutz auch über Tage hinweg erhalten blieb.

3.2.3 Detektoren

Die Einzelphoton-Detektormodule „APD 1“ und „APD 2“ wurden von Patrick Zarda in seiner Diplomarbeit [15] gebaut und ausführlich beschrieben. Wir beschränken uns daher auf die wesentlichen technischen Eigenschaften, die in der vorliegenden Arbeit von Bedeutung sind. Was die grundsätzliche Funktionsweise anbelangt, handelt es sich um Silizium-Avalanche Photodioden, in denen ein einfallendes Photon über ein erzeugtes Elektron-Loch-Paar eine Elektronenlawine

⁵Nach Auskunft des Herstellers sollte ein Piezo im Dauereinsatz mit nicht mehr als ca. 70% der Nennspannung betrieben werden, negative Werte bis zu 20 % der Nennspannung sind dagegen unproblematisch.

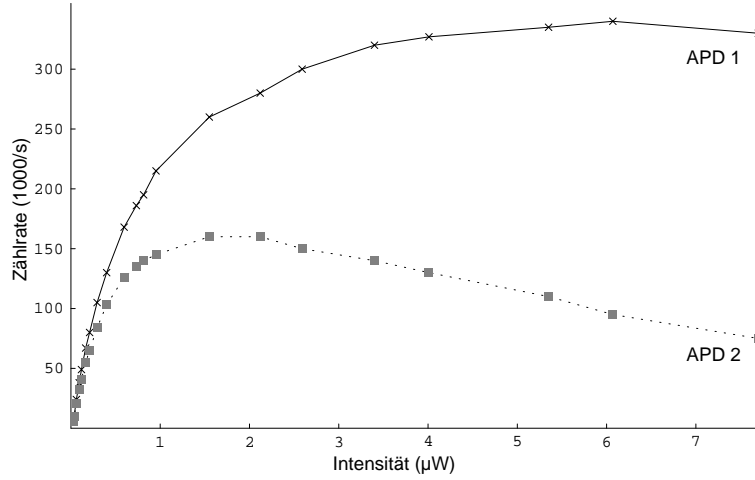


Abbildung 3.9: Sättigungsverhalten der Einzelphoton-Detektoren. Die Dunkelzählraten verhalten sich etwa invers zu den Sättigungszählraten.

auslöst. Dieser Effekt sorgt für eine Quanteneffizienz von etwa 55 % bei 800 nm, die allerdings oberhalb von 850 nm rasch absinkt. Mit der Kühlung in Zusammenhang stehen die Dunkelzählraten, die im Fall der hier verwendeten Module 125 s^{-1} (APD 1) bzw. 240 s^{-1} (APD 2) betragen. Nach der Detektion eines Photons wird der fließende Entladestrom passiv gelöscht, was eine Totzeit von $1 \mu\text{s}$ zur Folge hat. Das Diodensignal wird schließlich zu einem NIM-Puls von 5 ns Dauer aufbereitet, der zur Weiterverarbeitung entnommen werden kann. Nun wird aufgrund der Totzeit die Zählrate des Detektors nicht mehr linear mit der Zahl der eingestrahnten Photonen ansteigen, sondern im Fall hoher Intensitäten eine Sättigung erreichen. In Abb. 3.9 wurden die Zählraten der APD's in Abhängigkeit von der über die Faser eingestrahnten Leistung einer Weißlichtquelle gemessen (die Intensität ist daher nicht mit der Zählrate zu vergleichen). Die Einstellung der Helligkeit erfolgte nur mit Hilfe einer verstellbaren Blende, um Verfälschungen durch ein sich änderndes Spektrum zu verhindern. Wie man sieht, sind die Dioden bis etwa $150 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ (APD 1) bzw. $100 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ in guter Näherung linear. Sättigung tritt bei $340 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ (APD 1) bzw. $160 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ (APD 2) ein, in ungefährender Übereinstimmung mit der Totzeit von $\sim 1 \mu\text{s}$. Wie man übrigens feststellt, verhalten sich Sättigungszählrate $r_{Sat,i}$ und Dunkelzählrate dcr_i etwa invers zueinander:

$$\frac{r_{Sat,1}}{r_{Sat,2}} = 2.1 \sim 1.9 = \frac{dcr_2}{dcr_1} \quad (3.6)$$

Während die Sättigung aufgrund der geringen im MZI-Experiment erwarteten Intensitäten kaum eine Rolle spielt und erst ab Kapitel 6 bei der Untersuchung

neuartiger Diamantproben an Bedeutung gewinnt, macht sich der Effekt des „Detektorleuchtens“ [22] schon hier im Interferometer massiv bemerkbar. In einem ersten Probetrieb zum Test der Stabilisierung (vgl. voriger Unterabschnitt) wurde nämlich versuchsweise ein HBT-Histogramm⁶ auf einem NV-Zentrum aufgenommen. Einige der registrierten Photonen verursachen demnach im pn-Übergang der Silizium-APD ihrerseits die Emission eines Photons, ein Phänomen, das als “hot carrier emission” bekannt ist. Kann das ausgesandte Photon auf irgendeine Weise in den anderen Detektor gelangen, führt dies zu einem künstlichen Paarereignis im HBT-Experiment. Abb. 3.10 zeigt das erste HBT-Histogramm unter Verwendung eines 40 nm breiten Interferenzfilters bei 700 nm⁷ am Faserausgang. Obwohl die „Leuchtphotonen“ im Interferometer am

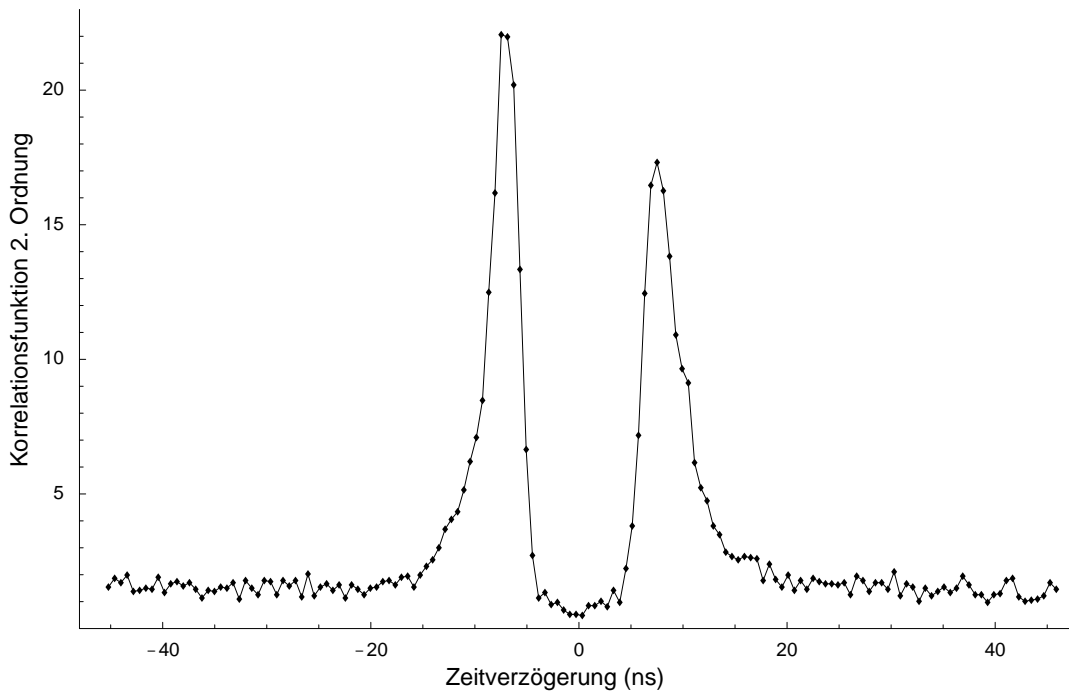


Abbildung 3.10: Testmessung der Photonenstatistik eines NV-Zentrums, die Rückkopplung der APD-Detektoren äußert sich in den Peaks bei ± 8 ns.

Faserende reflektiert werden können, wie dies in der zuvor verwendeten Konfiguration der Fall war [10], macht sich die Rückkopplung viel stärker als erwartet bemerkbar. Da daran auch das am Faserausgang eingebrachte Kurzpassfilter

⁶zur Bedeutung des HBT-Experiments siehe Abschnitt 3.3.2 und die Ausführungen in [10, 11]

⁷zum Transmissionsspektrum siehe Abschn. 4.1

750 N [10] kaum etwas ändert, muss die Reflexion hauptsächlich *innerhalb* des Interferometers, wahrscheinlich an den sehr genau senkrecht zum Strahl ausgerichteten Retroprismen oder an den Innenseiten des Strahlteilers stattfinden. Am Ende wurde das Problem dadurch gelöst, dass neben einer leichten Defokussierung der Linsen L_f das zuvor erwähnte Interferenzfilter unmittelbar vor APD 2 montiert wurde. Damit war neben der (auf Wellenlängen oberhalb 750 nm beschränkten) Eigenemission der Detektoren auch der grüne Stabilisierungslaser völlig abgeschirmt, freilich unter Einbuße an Zählrate.

3.3 Messtechnische Verfahren

Nachdem Aufbau und Justage des MZI abgeschlossen sind, stellt sich die Frage, wie sich damit Interferenzmuster und Photonenstatistik konkret messen lassen. Angestrebt werden in beiden Fällen möglichst einfache und zuverlässige Methoden, deren Prinzip und technische Umsetzung auf den folgenden Seiten zur Sprache kommen.

3.3.1 Interferenzmessung

Wie schon unter Abschnitt 3.2.2 angedeutet, bedient man sich zur Messung der Interferenzen ebenfalls des dort beschriebenen Regelkreises, nur dass jetzt durch einen Phasenschieber das Interferometer quasi absichtlich destabilisiert wird. Durch Verdrehen eines in den Stabilisierungsstrahl eingebrachten Glasplättchens mittels eines Schrittmotors ändert sich die Phasendifferenz jenes grünen Lichts⁸, was die Regelelektronik durch Nachführen des Piezo auszugleichen versucht. Abb. 3.11 zeigt den geometrischen Strahlverlauf beim Durchtritt durch das Glasplättchen mit Dicke d und Brechungsindex n : Mittels einfacher Geometrie und dem Brechungsgesetz $\sin(\varphi + \xi)/\sin(\beta) = n$ erhält man daraus für den vom Glasplättchen verursachten längeren optischen Weg

$$\Delta(\varphi) = d \cdot \left[\frac{n - \cos\left(\varphi + \xi - \arcsin\left(\frac{\sin(\varphi + \xi)}{n}\right)\right)}{\sqrt{1 - \left(\frac{\sin(\varphi + \xi)}{n}\right)^2}} + 1 \right], \quad (3.7)$$

wobei der Winkel φ von einem gewissen Offset gegenüber der Strahlachse aus gerechnet wird. Subtrahiert man von (3.7) den optischen Weg $\Delta(0)$ für die Ruhelage ξ , so ergibt sich die gesuchte Armlängenänderung Δ des Interferometers bei Drehung des Plättchens um den Winkel φ , wie in Abb. 3.12 dargestellt. Der Off-

⁸Der außerdem auftretende Strahlversatz ist gering und beeinträchtigt die Funktion nicht.

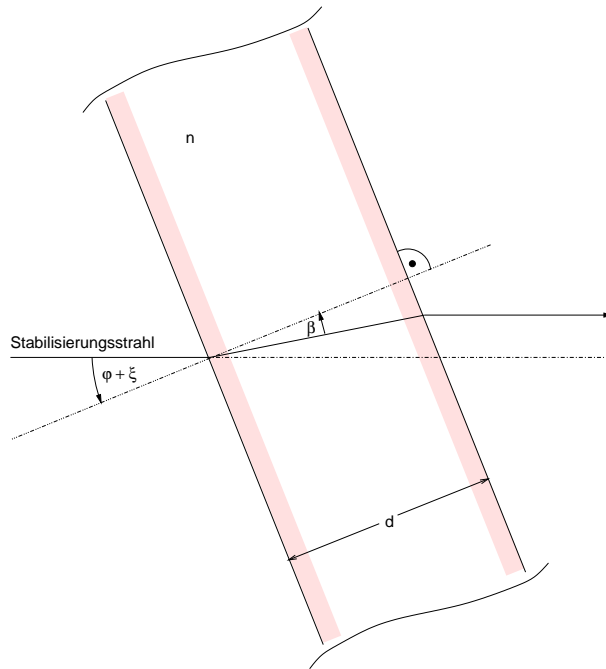


Abbildung 3.11: Strahlverlauf am Phasenschieber, der unter dem Winkel $\varphi + \xi$ im Strahl steht.

setwinkel ξ wurde eingeführt, weil beim Start vom absoluten Winkelnullpunkt gegenüber der Strahlachse für den gleichen Phasenschub ein sehr großer Winkelbereich durchzufahren wäre, was unnötig lange Messzeiten zur Folge hätte. Andererseits darf ξ auch nicht zu groß werden, da sonst die Stabilisierung der schnellen Änderung der Diodensignale nicht mehr folgen kann⁹. Als Kompromiss wurde $\xi = 10^\circ$ gewählt. Die Ansteuerung des Phasenschiebers erfolgt durch ein Programm, das den Winkel φ in einem Intervall $[\varphi_{start}, \varphi_{end}]$ in Schritten $\delta\varphi$ ändert und auf jedem φ -Wert für eine Zeit T_{int} die Zählraten der APD's integriert. Integrationszeiten von 1-2 s und Winkelschritte von $0,01^\circ$ (dies entspricht einer optischen Weglängenänderung von etwa $\frac{1}{70}\lambda$) erwiesen sich als ausreichend. Die nächste Aufgabe besteht darin, die Armlängen $L_{1,2}$ des MZI genau aufeinander abzugleichen. Da am Ende $L_1 = L_2$ bei $\varphi \approx 0^\circ$ und mittlerem Piezohub gelten soll, muß dies manuell mit Hilfe der Mikrometerschraube in Arm 2 geschehen. Unter Verwendung von Weißlicht und verschiedener Interferenzfilter wachsender Bandbreite kann der Abgleichpunkt nach und nach auf etwa $\pm 1 \mu\text{m}$ genau eingestellt werden. In Abb. 3.13 ist links eine Testmessung mit dem

⁹Aus dem gleichen Grund sollte die Winkelgeschwindigkeit des Schrittmotors auf den geringstmöglichen Wert von 1 Schritt pro Sek. eingestellt werden.

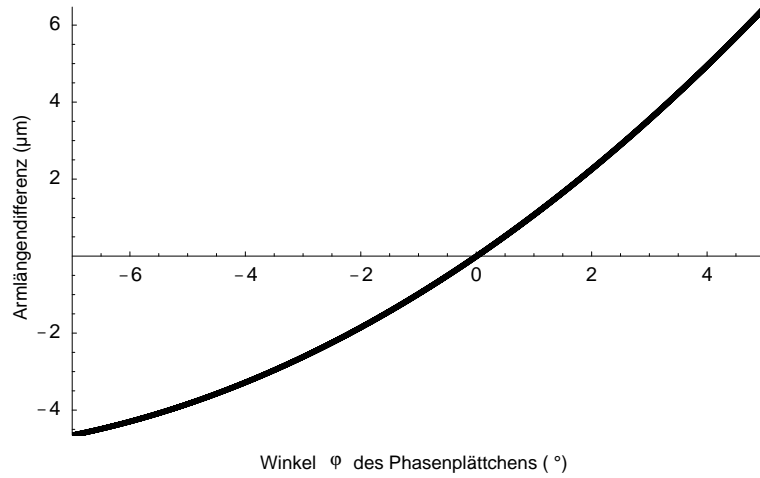


Abbildung 3.12: optische Weglängenänderung bei Drehung des Phasenschiebers um die Nulllage $\xi = 10^\circ$ gegenüber der Strahlachse.

670nm-Diodenlaser zu sehen, die den Verlauf der Piezospaltung und der Interferenzen in Abhängigkeit vom Winkel φ zeigt. Rechts ist das Interferenzmuster von auf 40 nm Breite gefiltertem Weißlicht dargestellt. Die resultierende Wellenlänge des Interferenzmusters wurde durch Einstellen des Brechungsindex in Gl. (3.7) auf $n=1,55$ mit 705 nm an die Erwartung angepasst und stellt damit die Eichung für die späteren Messungen dar. Es sollte noch erwähnt werden, dass die von Markus Weber diskutierte Phasenunschärfe aufgrund mechanischer Vibrationen [21] bei der hier verwendeten Stabilisierung über das Differenzsignal vernachlässigbar ist. Aus Testmessungen ergab sich ein relatives Photorauschen von

$$\frac{\Delta U_{Diode}}{U_{Diode}} \leq 1\%. \quad (3.8)$$

3.3.2 Messung der Photonenstatistik

Dass das eben beschriebene Messverfahren für die Interferenzen so suggestiv erscheint, beruht auf dem speziellen Aufbau des MZI, das die Fouriertransformierte des Spektrums sozusagen automatisch erzeugt. Ein ähnlich natürliches Experiment ersannen Hanbury, Brown und Twiss [13] für die Intensitätskorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$. Deren im Jargon nach ihnen benannter Aufbau („HBT“) ist in Abb. 3.14 in der hier verwendeten Version zu sehen. Ursprünglich zur Bestimmung von Sterndurchmessern entwickelt, dient das HBT-Experiment heute vielfach als Analyseinstrument für die Photonenstatistik. Das Prinzip besteht

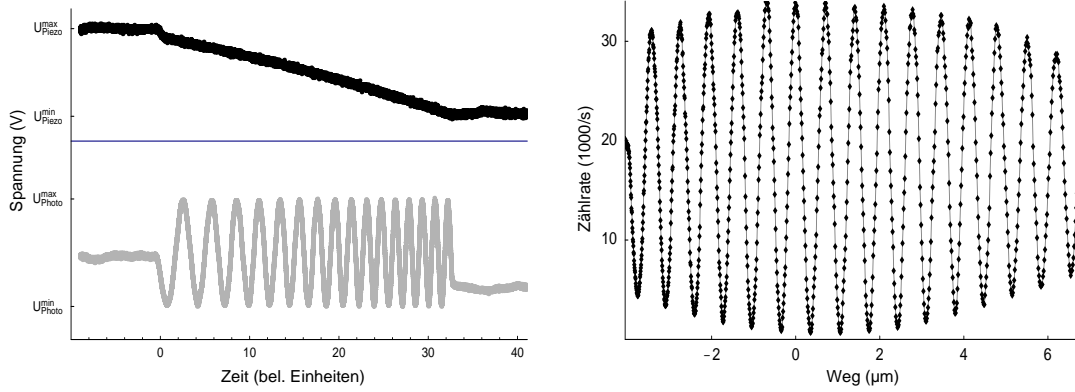


Abbildung 3.13: Messungen zum Test des Phasenschiebers. Links eine Oszilloskopaufnahme von Interferenzen des Diodenlasers, verglichen mit der Piezospaltung. Rechts auf 40 nm gefiltertes Weißlicht; der winkelabhängige Phasenschub (vgl. 3.12) ist herauskorrigiert, Kontrast und Periode betragen $\geq 95.5\%$ bzw. 705 nm.

darin, dass Photonen als energetisch unteilbare Objekte¹⁰ am Strahlteiler entweder Weg 1 zur APD 1 oder Weg 2 zur APD 2 einschlagen und dort nachgewiesen werden. Registriert wird der zeitliche Abstand τ zweier aufeinanderfolgender Photonen, die im folgenden mit „START“ bzw. „STOP“ bezeichnet werden. Vielfache Wiederholung des Versuchs liefert ein Histogramm der Photonenpaarereignisse $n_p(\tau)$ in Abhängigkeit von der Zeitdifferenz τ . Die Behauptung ist nun, dass unter gewissen Bedingungen eine Proportionalität zwischen der Verteilung $n_p(\tau)$ und der Korrelationsfunktion 2. Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ besteht. Dazu erinnern wir uns der Definition

$$g^{(2)}(\tau) \equiv \frac{\langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_2^\dagger(t + \tau) \hat{a}_2(t + \tau) \hat{a}_1(t) \rangle}{\langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) \rangle \langle \hat{a}_2^\dagger(t + \tau) \hat{a}_2(t + \tau) \rangle}, \quad (3.9)$$

wobei die Indizes 1, 2 den jeweiligen Detektor beschreiben. Liest man diesen Ausdruck als auf die Zählrate normierte bedingte Wahrscheinlichkeitsverteilung $P_c(t + \tau|t)$ für ein STOP-Photon zur Zeit $t + \tau$, falls zur Zeit t bereits ein START-Photon nachgewiesen wurde, so erhält man

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P_c(t + \tau|t)}{\alpha_2 S_2 \langle \hat{a}_2^\dagger(t + \tau) \hat{a}_2(t + \tau) \rangle} \quad \text{mit} \quad \alpha_2 S_2 \langle \hat{a}_2^\dagger(t + \tau) \hat{a}_2(t + \tau) \rangle \equiv r_2. \quad (3.10)$$

α_2 und S_2 beschreiben die Detektoreffizienz bzw. -fläche des STOP-Detektors (APD 2). Die Asymmetrie der beiden Detektoren kommt wie unten beschrieben

¹⁰Es wird hier also „Welcher-Weg“-Information abgefragt.

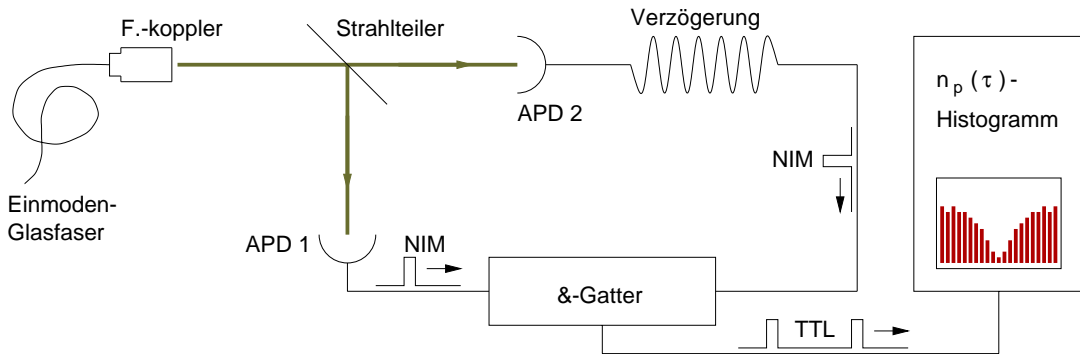


Abbildung 3.14: Untersuchung der Photonenstatistik im einfachen HBT-Experiment; für Messungen durch das MZI gilt Abb.3.5, anstelle des Strahlteilers denke man sich das Interferometer.

durch eine elektronische Verzögerung des Signals von APD 2 zustande. Andererseits gilt für die Zahl der Paarereignisse mit Zeitdifferenz τ , $n_p(\tau)$:

$$n_p(\tau) = N_1 \cdot \Delta\tau \cdot P_c(t + \tau|t), \quad (3.11)$$

wenn N_1 die Anzahl der START-Photonen in APD 1 bezeichnet und das Produkt $\Delta\tau \cdot P_c(t + \tau|t)$ die Wahrscheinlichkeit für ein STOP-Photon in APD 2 innerhalb eines kleinen Zeitfensters $\Delta\tau$ um τ herum ausdrückt. Mit den Gleichungen (3.10) und (3.11) erhält man

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{n_p(\tau)}{N_{start} \Delta\tau r_2} \quad (3.12)$$

oder wegen $N_1 = r_1 \cdot T_{int}$ mit der gesamten Integrationszeit T_{int}

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{n_p(\tau)}{r_1 r_2 \Delta\tau T_{int}}, \quad \text{wenn} \quad \frac{1}{r_i} \gg \tau_0. \quad (3.13)$$

Demnach setzt sich $g^{(2)}(\tau)$ aus experimentell einfach zugänglichen Größen zusammen; allerdings unter der Voraussetzung, dass der mittlere Photonenabstand, gegeben durch die inversen Zählraten r_i^{-1} , sehr viel größer ist als die charakteristische Zeitkonstante τ_0 , auf der die Photonstatistik vom zufälligen Wert $g^{(2)}(\tau) = 1$ abweicht. Denn nur dann gilt die Verknüpfung 3.10 von $n_p(\tau)$ mit $P_c(t + \tau|t)$, wonach die einzelnen Photonpaarereignisse also voneinander unabhängig sind. Diese Bedingung ist bei den hier auftretenden Zählraten von bis zu 10^4 s^{-1} und Zeitkonstanten $\tau_0 \sim 10 \text{ ns}$ gut erfüllt. Wenden wir uns nun der Verarbeitung der von den APDs zu den Zeiten t bzw. $t + \tau$ gelieferten NIM-Pulse zu. Um auch negative Zeitdifferenzen vermessen zu können, bedient man sich eines langen Kabels, das den STOP-Puls von APD 2 um ca. 61 ns gegenüber

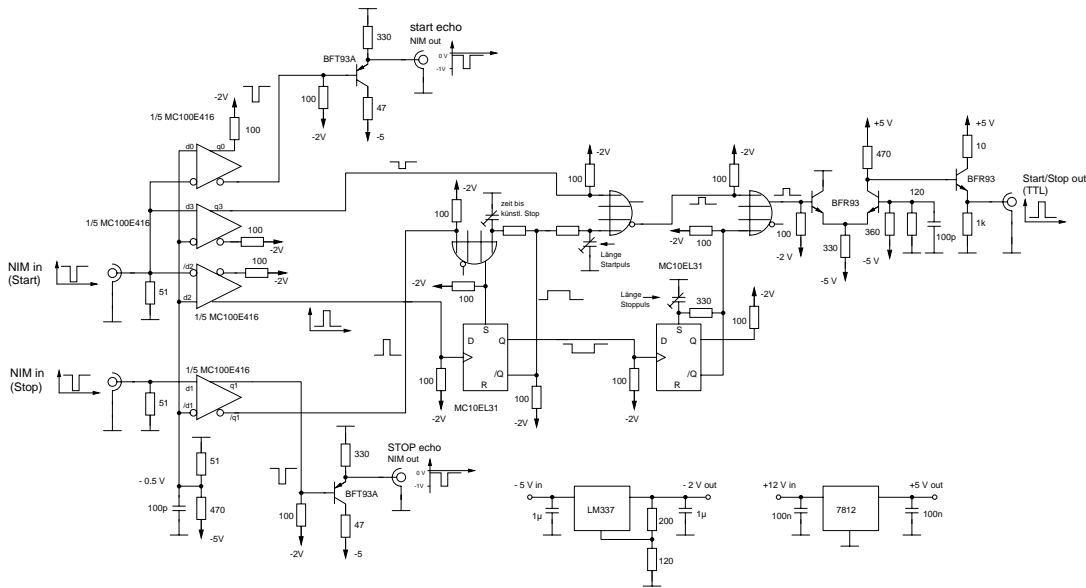


Abbildung 3.15: Schaltbild des UND-Gatters, das die NIM-Eingangssignale „START“ und „STOP“ zu Paaren von TTL-Pulsen mit Abstand τ zusammenfasst.

dem START-Puls aus APD 1 verzögert. Ein schneller Konverter wandelt die eintreffenden START- und STOP-Pulse in TTL-Signale mit Zeitabstand τ um. Abb. 3.15 zeigt die dafür verwendete Schaltung. Die Elektronik funktioniert ähnlich einem &-Gatter und lässt sich in einem Flussdiagramm (siehe Abb.3.16) ausdrücken: Mit dem künstlichen Stop bei ca. 120 ns Zeitverzögerung erreicht man eine höhere Messeffizienz, da nur die Paarereignisse innerhalb eines verzögerten Zeitfensters von 60 ± 40 ns (bzw. $-40 \text{ ns} \leq \tau \leq 40 \text{ ns}$) interessieren und „Versuche“ mit zu langen Zeitabständen τ zwischen START und STOP abgebrochen werden. Das letzte Glied in der Kette übernimmt schließlich ein Time-to-Digital-Converter (TDC), der die Zeitdifferenz der Anstiegsflanken der eintreffenden TTL-Pulse vermisst. Das Gerät funktioniert im Wesentlichen auf der Basis von CMOS-Prozessen unter Verwendung digitaler Laufzeiten, die mit Hilfe eines internen GHz-Taktgebers auf wenige hundert ps genau bestimmt werden können. Die Auflösung des TDC ist dann durch die Breite $\Delta\tau$ der Zeitfenster gegeben, in denen die Paarereignisse $n_p(\tau)$ abgelegt werden. Im Allgemeinen sind nicht alle Zeitintervalle gleich breit, sondern variieren ihre Größe periodisch, also z. B. abwechselnd. Als Folge davon sammeln relativ breite Zeitbins mehr Paarereignisse auf als schmale. Dieser Effekt wird als differentielle Nichtlinearität bezeichnet und macht sich in Histogramm-Aufnahmen als systematisches Rauschen störend

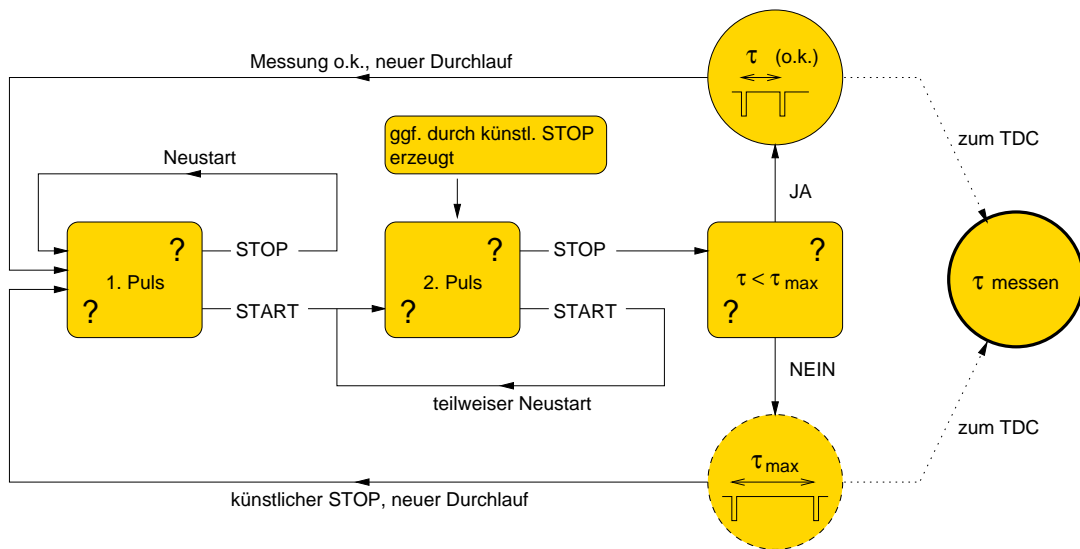


Abbildung 3.16: Flussdiagramm des &-Gatters. Der Baustein empfängt START- und STOP-Puls und bildet daraus ggf. TTL-Pulse, die an das TDC zur Zeitabstandsmessung weitergegeben werden.

bemerkbar. Im Experiment soll das „GP 1“ der Firma acam-electronic zum Einsatz kommen. Als Betriebsarten stehen grundsätzlich der „half resolution“-Modus und der „high resolution“-Modus zur Verfügung. Ersterer fasst intern jeweils zwei benachbarte Zeitbins zusammen, was die Nichtlinearität deutlich reduziert, allerdings auf Kosten der Zeitauflösung. Letzterer hingegen erlaubt es, durch geeignete Beschaltung die Auflösung zu verdoppeln und so Werte bis zu $\Delta\tau = 125$ ps zu erreichen. Da beide Modi voneinander unabhängig ein- oder ausgeschaltet werden können, bieten sich insgesamt 4 mögliche Kombinationen:

Modus	half resolution	high resolution	Auflösung
1	ein	ein	300 ps
2	aus	ein	150 ps
3	ein	aus	600 ps
4	aus	aus	300 ps

Um die optimale Einstellung zu ermitteln, wurden für die verschiedenen Einstellungen HBT-Messungen mit Weißlicht durchgeführt, die in Abb. 3.17 zusammengefasst sind. Offensichtlich weist nur Modus 3 eine vertretbar geringe Nichtlinearität auf, sodass die Entscheidung auf diese Einstellung fiel. Die recht große Binbreite von 600 ps kann dabei noch akzeptiert werden, da die Zeitunschärfe der Detektoren von etwa 1.2 ns die Gesamtauflösung limitiert[10]. Von größerem

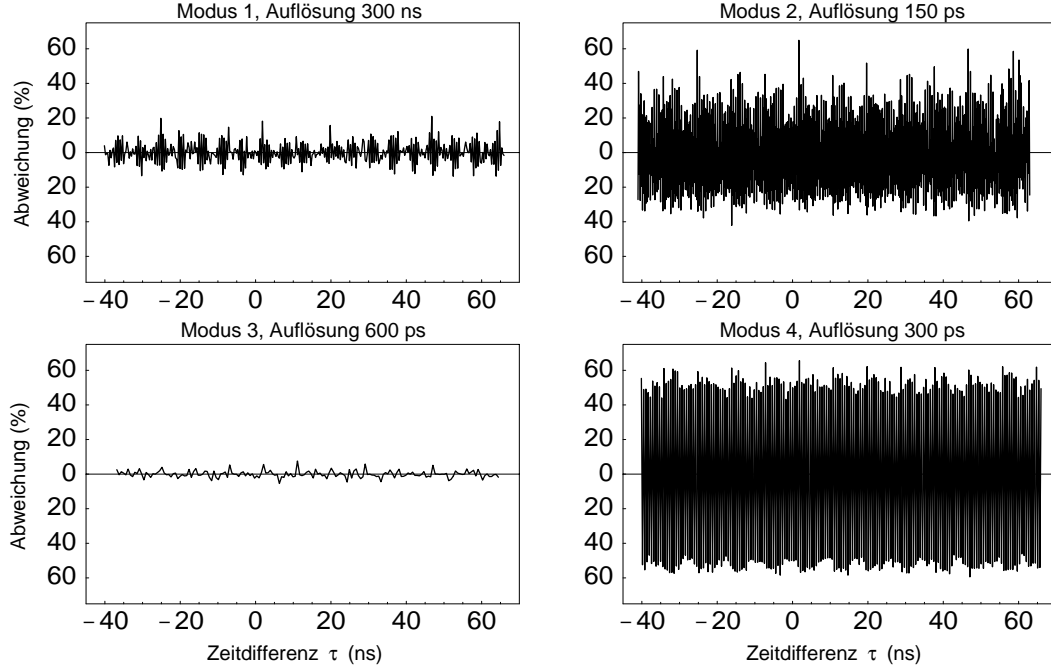


Abbildung 3.17: Zählstatistik der TDC-Messelektronik in vier verschiedenen Betriebsmodi, dargestellt ist die Abweichung vom Mittelwert $g^{(2)}(\tau) = 1$

Interesse ist das statistische Verhalten des 600 ps - Modus, das im folgenden noch genauer untersucht wird. Man geht dazu von der Annahme aus, dass die Paarereignisse im Fall von Weißlicht näherungsweise poissonverteilt sind. Für jeden durch ein Paarereignis repräsentierten „Versuch“ gilt die Wahrscheinlichkeitsverteilung

$$p(n_p(\tau)) = \frac{\lambda^{n_p} e^{-\lambda}}{n_p!}$$

mit einem Parameter λ . Dann gilt für den Erwartungswert $\langle n_p(\tau) \rangle$ und die Standardabweichung $\Delta(n_p(\tau))$ nach N_0 Versuchen:

$$\langle n_p(\tau) \rangle = N_0 \lambda \quad \text{und} \quad \Delta(n_p(\tau)) = \sqrt{N_0 \lambda} \quad (3.14)$$

sodass man als relativen Fehler der Paarereignisse („Rauschen“) erhält:

$$\frac{\Delta(n_p(\tau))}{\langle n_p(\tau) \rangle} = \frac{\sqrt{N_0 \lambda}}{N_0 \lambda} \sim \frac{1}{\sqrt{\langle n_p(\tau) \rangle}} \quad (3.15)$$

In Abb. 3.18 sieht man oben den Verlauf des relativen Fehlers mit dem Erwartungswert auf unterschiedlichen Skalen für „schlechte“ (links) und „gute“ (rechts)

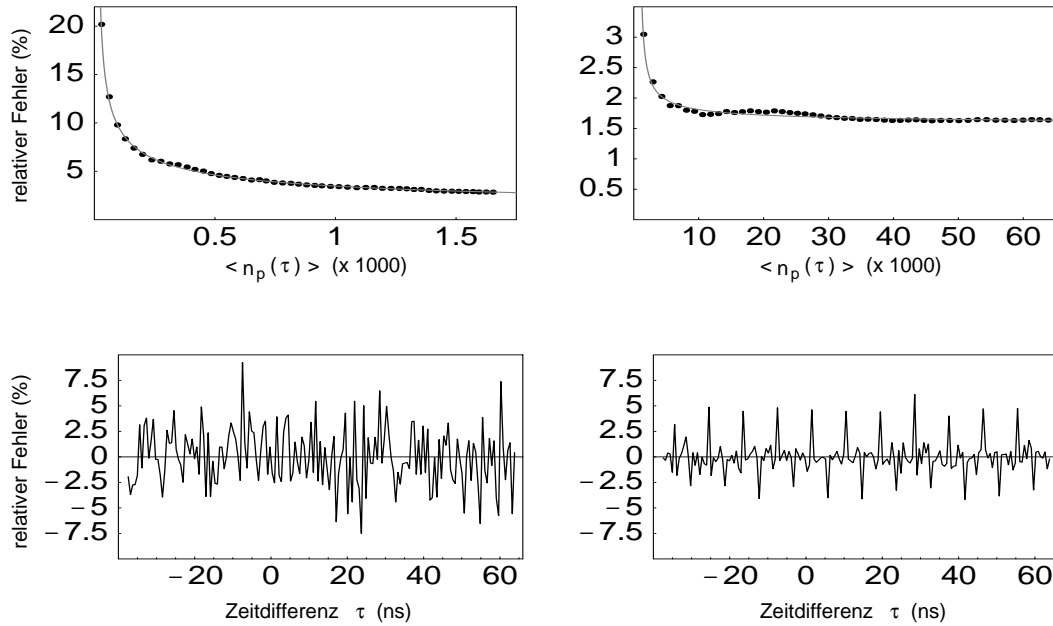


Abbildung 3.18: Analyse der Zählstatistik im Modus 3: Oben der relative Fehler als Funktion des Erwartungswertes $\langle n_p(\tau) \rangle$ auf verschiedenen Skalen, unten die normierten HBT-Histogramme am Ende der jeweiligen Messreihe; Erläuterungen siehe Text.

Statistik. Darunter sind die zugehörigen HBT-Abweichungen vom Mittelwert $g^{(2)}(\tau) = 1$ dargestellt, wie sie am Ende der jeweiligen Messreihe bei $\langle n_p(\tau) \rangle = 1.7 \cdot 10^3$ bzw. $\langle n_p(\tau) \rangle = 65 \cdot 10^3$ auftreten. Man erkennt, dass bei kleinen Werten $\langle n_p(\tau) \rangle$, also geringen Histogrammhöhen, der relative Fehler etwa mit der inversen Wurzel des Mittelwertes abfällt (oben) und das Rauschen im HBT zufällig zu sein scheint (unten). Erst bei sehr guter Statistik (rechts) wird sichtbar, dass der relative Fehler nicht gegen 0 konvergiert, sondern aufgrund einer verbliebenen differentiellen Nichtlinearität mit 1.6 % seinen kleinstmöglichen Wert erreicht. Im Experiment sind derart kleine Abweichungen vernachlässigbar, weshalb Modus 3 unter statistischen Gesichtspunkten tatsächlich die beste Wahl darstellt. Zuletzt gilt es noch die Normierung der aus dem Histogramm gewonnenen $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion zu überprüfen. Aus dem Geradenfit in Abb. 3.19 liest man eine mittlere Abweichung von 2 % gegenüber dem Sollwert $g^{(2)}(\tau) = 1$ ab, ein tolerierbarer Fehler, der vermutlich bei geringeren Zählraten, wie sie im Antibunching-Experiment auftreten werden, noch weiter abnimmt.

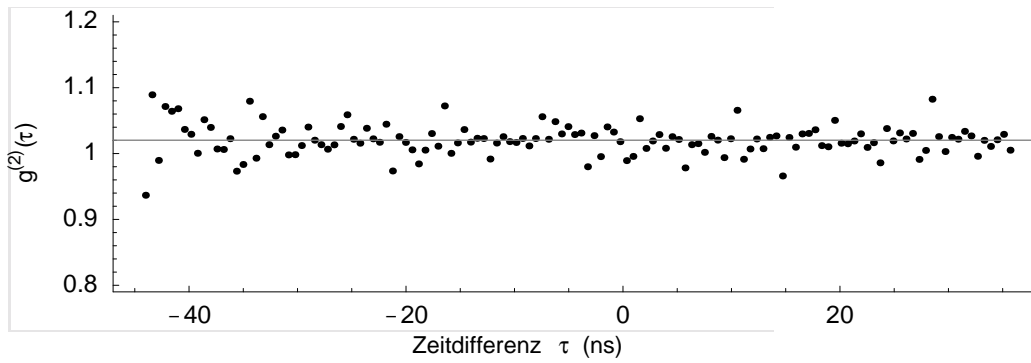


Abbildung 3.19: Normierungstest der HBT-Messelektronik. Die Abweichung vom Sollwert beträgt 2 %.

Kapitel 4

Demonstration der Komplementarität

Nachdem Aufbau und Justage abgeschlossen sind und die notwendigen Messverfahren implementiert wurden, können nun die eigentlichen Messungen durchgeführt werden. Dazu wird zunächst ein beliebig ausgewähltes NV-Zentrum in der 1b-Diamantprobe durch transversale Fluoreszenzverteilung, Spektrum und Sättigungskurve charakterisiert. Der zweite Abschnitt enthält dann die für dieses Zentrum gewonnenen Ergebnisse, deren Auswertung und Diskussion.

4.1 Das verwendete NV-Zentrum

Bei der Auswahl des für die Messungen vorgesehenen NV-Zentrums war darauf zu achten, ein möglichst isoliertes Zentrum in einem von Verunreinigungen freien Bereich des Diamanten zu finden. Damit sollte sich die Hintergrundstrahlung auf ein Minimum reduzieren lassen. Die besondere Bedeutung dieses Aspekts liegt darin, dass ein vermindertes Fluoreszenz-Hintergrund-Verhältnis den Einzelphotonencharakter sowohl im HBT-Experiment als auch in Bezug auf die Interferenzversuche verwischt. Wie sich herausstellte, ließ sich der Fluoreszenzkontrast dieses Zentrums unter Verwendung des Farbfilters RG 645 anstelle des früher benutzten RG 630 verbessern, obwohl die absolute Fluoreszenzintensität etwas vermindert wurde. Abb. 4.1 zeigt die zweidimensionale Intensitätsverteilung des ausgesuchten Defekts bei der niedrigen Anregungsleistung von 0,8 mW. Aus der maximalen sowie der gemittelten Hintergrundzählrate errechnet sich eine „Sichtbarkeit“ von

$$\frac{\text{NV-Intensität}}{\text{Hintergrundintensität}} = \frac{9}{1}, \quad (4.1)$$

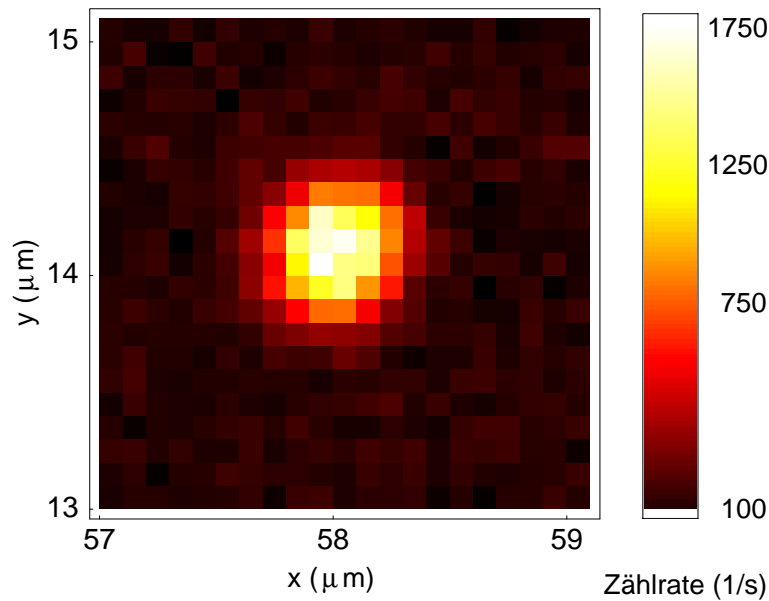


Abbildung 4.1: Zweidimensionale Intensitätsverteilung des ausgewählten NV-Zentrums bei 0,8 mW Pumpleistung. Die Farbskala bezieht sich auf die Zählrate eines Detektors.

wobei der mittlere Hintergrund durch die Dunkelzählrate des Detektors dominiert wird. Die gute Unterdrückung der Störstrahlung hängt offenbar mit der Abschneidewellenlänge des RG 645 zusammen, dessen Spektrum in Abb. 4.2 links dargestellt ist. Naturgemäß dämpft diese Transmissionscharakteristik die kurzwellige Flanke des NV-Spektrums, das daneben zu sehen ist (oberste Kurve). Die Ramanlinien 1. Ordnung bei 575 nm und 2. Ordnung bei 615 nm treten bei der gewählten Pumpintensität von 4,1 mW bereits deutlich hervor. Dagegen ist das Charakteristikum des NV-Zentrums, die Null-Phononen-Linie bei 638 nm, eher schwach, aber trotzdem noch sicher auszumachen. Die Halbwertsbreite des näherungsweise gaussförmigen Profils beträgt etwa 80 nm. Nimmt man das Spektrum an einer wenige μm vom NV-Zentrum entfernten Stelle im defektfreien Diamantraum auf, erhält man das Hintergrundspektrum, das erwartungsgemäß nur die Ramanlinien reproduziert (unterste Kurve). Die mittlere Kurve zeigt schließlich das (berechnete) NV-Spektrum, wie es sich nach der Filterung durch das RG 645 darstellt. Wie man erkennt, verursacht das Filter eine leichte Asymmetrie des Spektrums, unterdrückt dafür aber die Ramanintensität weitgehend. Um also möglichst wenig Fremdlicht in das Interferometer eindringen zu lassen, wurde das RG 645 direkt hinter den Faserausgang gesetzt. Aus früher erwähnten Gründen benötigt man noch das Interferenzfilter IF 700 vor APD 2, dessen Transmissions-

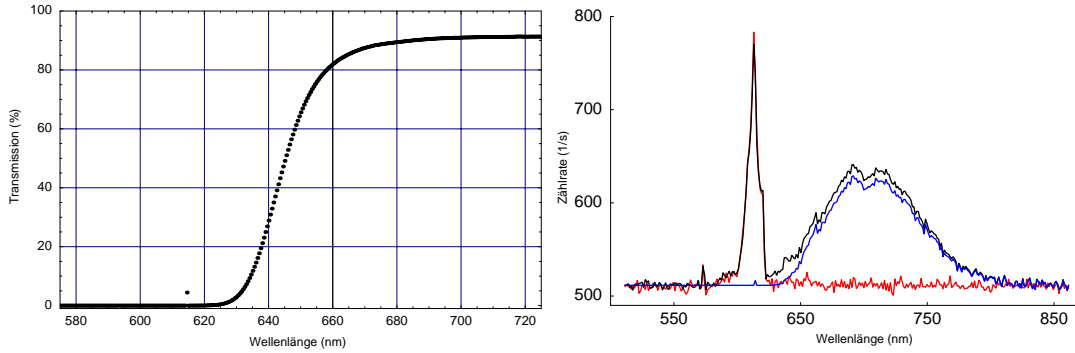


Abbildung 4.2: Wirkungsweise des Farbfilters RG 645. Links ist das Transmissionspektrum zu sehen, rechts das Spektrum des untersuchten NV-Defekts (obere Kurve). Zusätzlich sind das mit dem RG 645 gefilterte Fluoreszenzspektrum (mittlere Kurve) und das Hintergrundspektrum mit den Ramanlinien bei ca. 575 nm und 615 nm (untere Kurve) eingezeichnet.

spektrum samt seiner Wirkung auf das NV-Spektrum der Vollständigkeit halber ebenfalls illustriert werden sollen (Abb. 4.3). Während das Spektrum unmittelbar das Interferenzmuster bestimmt, hängt der Verlauf der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion wesentlich von der Pumprate k_{12} im 3-Niveau-Modell nach Abb. 3.1 ab [11], die wiederum proportional zur Anregungsleistung P ist. Zweckmäßig bezieht man P auf die Sättigungsleistung, die sich aus der entsprechenden Kurve in Abb.4.4 ermitteln lässt. Gemessen wurde unter Verwendung des RG 645 im einfachen HBT-Aufbau, also ohne den Umweg durch das Interferometer. Die durchgezogene Linie der NV-Kurve beschreibt einen Fit gemäß dem bekannten Modell

$$r(P) = r_0 \cdot \frac{P}{P + P_{sat}} + \alpha \cdot P \quad (4.2)$$

mit der asymptotischen Fluoreszenzzählrate r_0 für $P \rightarrow \infty$, der Sättigungsleistung P_{sat} und der linearen Anstiegskonstante α des Raman-Hintergrunds. Dessen Verlauf mit P wurde auf einer defektfreien Stelle wenige μm neben dem Zentrum separat gemessen (untere Kurve in Abb.4.4). Man findet eine Sättigungsleistung P_{sat} von 2,4 mW. Dieser Wert liegt über dem in [11] berichteten von 1,3 mW. Die Größe hängt allerdings empfindlich von der Güte der Justage des konfokalen Mikroskops und der jeweiligen Fokussierung ab, die seitdem natürlich mehrfach verändert wurde. Zudem erbrachten weitere Sättigungsmessungen am selben Zentrum, jedoch mit etwas veränderten Versuchsbedingungen (Filter, Fokussierung etc.) etwas abweichende Werte, was zu einem geschätzten Toleranzbereich von $2,4 \pm 1$ mW führt.

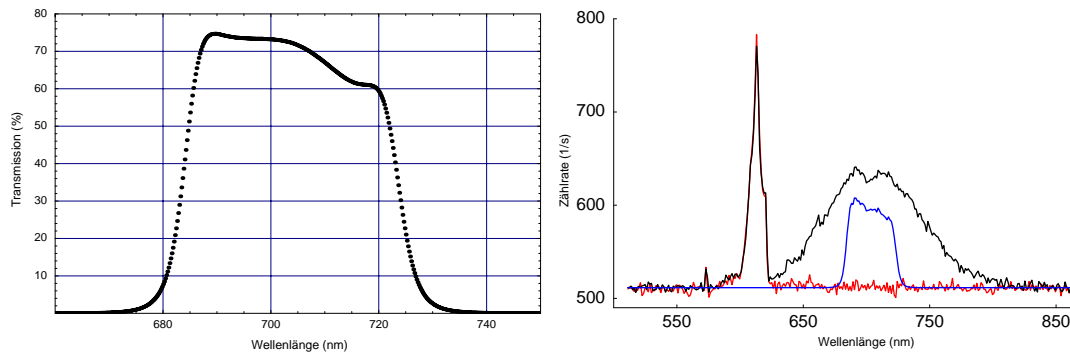


Abbildung 4.3: Wirkungsweise des Interferenzfilters IF 700. Gegenüber dem Farbfilter RG 645 fällt die deutlich reduzierte Gesamttransmission des NV-Lichts auf, die Ramanstrahlung wird jedoch noch etwas besser als mit dem Farbfilter geblockt.

4.2 Versuchsergebnisse

In diesem Kapitel soll nun also die Interferenz einzelner Photonen und damit das Komplementaritätsprinzip im Sinne des Welle-Teilchen-Dualismus demonstriert werden. Grundsätzlich orientiert sich die Argumentation an folgendem Konzept:

1. Einfaches Hanbury-Brown-Twiss-Experiment. Die APD-Detektoren werden dazu direkt hinter die beiden Ausgänge des Strahlteilers, also in die Interferometerarme, gestellt. Diese Messung liest grundsätzlich Welcher-Weg-Information aus. Der Einzelphotonencharakter der Lichtquelle stellt sicher, dass kaum Koinzidenzen bei $\tau = 0$ auftreten und so das Teilchenverhalten der Photonen sichtbar wird.
2. Nachweis der Interferenz. Die APD's befinden sich nun an den Ausgängen des MZI, wie in Abb.3.5 dargestellt.
3. Demonstration, dass auch aus dem Interferometer wieder einzelne Photonen austreten. Der gleiche Aufbau, wie er für die Interferenzen (2) verwendet wurde, dient dabei zur Aufnahme eines weiteren HBT-Histogramms.

Die genannten Messungen werden bei drei verschiedenen Intensitäten durchgeführt, nämlich unter, etwas über und weit oberhalb der Sättigungsintensität. Aus den jeweiligen Resultaten lassen sich Schlüsse zur Photonenzahlstatistik der NV-Fluoreszenzphotonen ziehen.

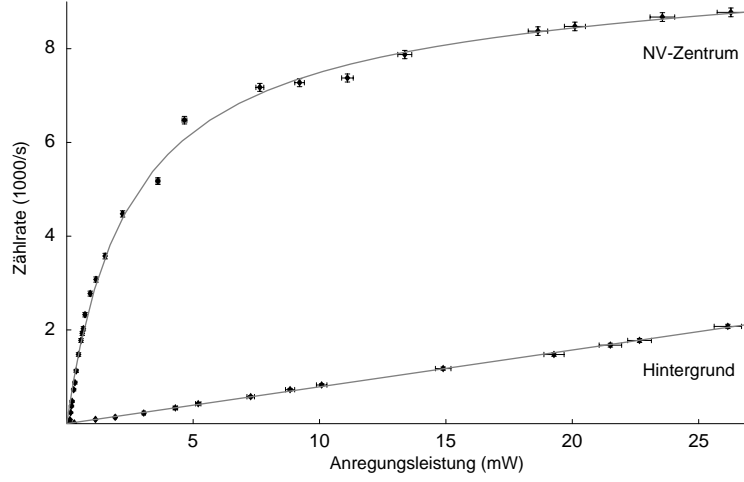


Abbildung 4.4: Sättigungskurve des untersuchten NV-Zentrums. Der reinen Fluoreszenzintensität überlagert sich der linear ansteigende Raman-Hintergrund, dessen Abhängigkeit von der Laserleistung ebenfalls dargestellt ist.

4.2.1 Anregung unterhalb der Sättigungsleistung

Je niedriger die Pumpleistung und damit die Rückpumprate k_{21} gewählt wird, desto größer wird der mittlere Abstand der Photonen voneinander sein. Zusammen mit einem geringen Raman-Anteil erhöht dies die Signifikanz für Einzelphotoneninterferenz. Umgekehrt verhält sich die Paarereignis-Zählrate im HBT-Experiment wie das inverse Quadrat der Einzelzählraten. Um also die Messzeit im akzeptablen Rahmen zu halten, wurde als Kompromiss $(0,35 \pm 0,05) \cdot P_{sat}$ gewählt. Abb.4.5 zeigt die $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion in der reinen HBT-Konfiguration für diese Pumpleistung. Die Messpunkte folgen einem theoretischen Modell, das sich durch eine Linearkombination von Exponentialfunktionen beschreiben lässt:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + c_2 e^{\tau/\tau_2} + c_3 e^{\tau/\tau_3} \quad (4.3)$$

Die Gleichung stellt gewissermaßen eine Erweiterung des in Abschnitt 2.1.1 abgeleiteten Ausdrucks (2.14) dar und folgt aus dem Energieniveau-Schema des NV-Zentrums [11](Abb. 3.1). Der für den zweiten Exponentialterm verantwortliche Zustand 3 spielt hauptsächlich bei hohen Anregungsleistungen eine Rolle und soll daher erst im Zusammenhang mit den entsprechenden Messungen diskutiert werden. An dieser Stelle steht etwas anderes im Vordergrund. Wie die Auswertung des in Abb. 4.5 eingezeichneten Fits ergibt, beträgt der Wert von $g^{(2)}(\tau)$ an der Stelle $\tau = 0$ 32,7%. Demgegenüber erwartet man aufgrund der Hintergrundzählraten 30,4%, was innerhalb der statistischen Fehlergrenzen mit

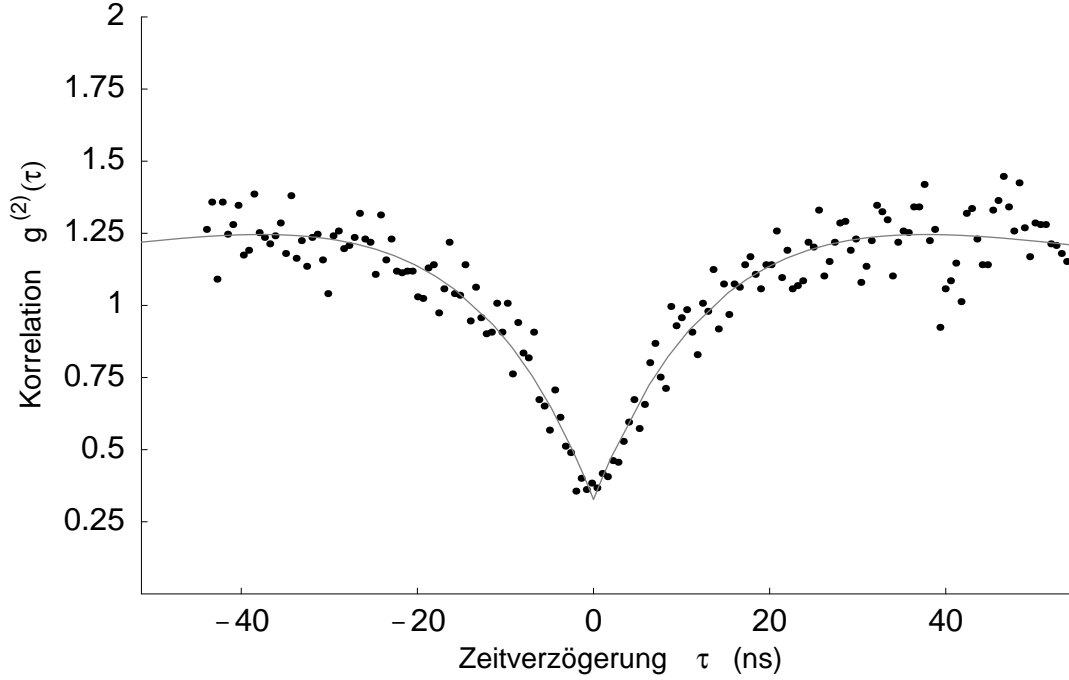


Abbildung 4.5: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 35% der Sättigungsleistung in reiner HBT-Konfiguration, die durchgezogene Linie beschreibt einen exponentiellen Fit an die Messwerte; Erläuterungen siehe Text

dem Fitwert übereinstimmt. Man geht zur Ableitung von einer einfachen stochastischen Überlegung aus, wie sie bereits in [10] erwähnt wurde. Demnach setzt sich $g^{(2)}(0)$ aus Koinzidenzen zusammen, an denen Raman- und Dunkelzählrate beteiligt sind:

$$g^{(2)}(0) = 1 - p_S(1) \cdot p_S(2), \quad (4.4)$$

mit der Wahrscheinlichkeit $p_S(i) = \frac{r_{ges}(i) - r_H(i)}{r}$, und den Zählraten r_i , dass es sich bei einem in APD (i) detektierten Ereignis um ein Signalphoton (S) des NV-Zentrums und nicht um ein Hintergrundereignis (H) ohne Einzelphotonencharakter handelt. Trivialerweise gilt ja $(p_S(1) + p_H(1)) \cdot (p_S(2) + p_H(2)) = 1$ und mit der Tatsache, dass Koinzidenzen vom Typ $p_S(1) \cdot p_S(2)$ an der Stelle $\tau = 0$ nicht auftreten können, folgt die Behauptung. Die jeweiligen Wahrscheinlichkeiten $p_S(i)$ und $p_H(i)$ sind aus den mitprotokollierten Zählraten bekannt, sodass sich der erwartete Einbruch leicht berechnen lässt. Offenbar dominieren im Grenzfall schwacher Anregung die Dunkelereignisse der APD's die Hintergrundzählraten. Würde $g^{(2)}(\tau)$ auf letztere korrigiert, ergäbe sich ein Einbruch auf ca. 5%. Wir wollen an dieser Stelle noch auf einen grundsätzlichen Sach-

verhalt eingehen, der die besondere Bedeutung des Wertes $g^{(2)}(0)$ unterstreicht. Dazu schweifen wir etwas vom Thema ab und betrachten n unabhängige Quantenemitter auf so engem Raum, dass ihr Fluoreszenzlicht gemeinsam detektiert werde. Mit einer ähnlichen Betrachtung wie oben und den Wahrscheinlichkeiten p_i für ein Fluoreszenzphoton von Zentrum i lässt sich $g^{(2)}(0)$ dann schreiben als

$$g^{(2)}(0) = \sum_{i,j=1}^n p_i p_j (1 - \delta_{ij}). \quad (4.5)$$

Unter Beachtung von $p_{i,j} = 1/n$ findet man nach kurzer Rechnung

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n}, \quad (4.6)$$

woraus folgt, dass ein Einbruch besser als 50% als hinreichende Bedingung für eine „echte“ Einzelphotonenquelle genügt.

Wie die weitere Analyse der HBT-Messung ergibt, beträgt die Zeitkonstante τ_2 , mit der der Einzelphotonencharakter verschwindet, ca. 20 ns. Demgegenüber wurde in früheren Untersuchungen [11] bei schwacher Anregung ein maximaler Wert von ca. 12 ns ermittelt. Dies stand im Einklang mit der Erwartung $\lim_{P \rightarrow 0} \tau_2 = \tau_0$, wonach der Pump- und Zerfallszyklus im Grenzfall $P \rightarrow 0$ durch die natürliche Zerfallszeit des NV-Zentrums $\tau_0 = 11,6$ ns gegeben ist [23]. Der ungewöhnlich große Wert für τ_2 , der nun gefunden wurde, erscheint daher merkwürdig. Es stellt sich die Frage nach der Ursache dieser Abweichung. Dabei kommen grundsätzlich Messfehler und physikalische Gründe in Betracht. Innerhalb der ersten Kategorie erscheint es denkbar, dass wegen der relativ schlechten Statistik des Histogramms eine nicht ganz wahrheitsgetreue Anpassung des exponentiellen Fits erfolgte. Das sehr große 95%-Vertrauensintervall von -21 ns $\leq \tau_2 \leq 60$ ns steht dazu jedenfalls nicht im Widerspruch. Systematische Messfehler wären in der TDC-Elektronik selbst zu suchen, die jedoch aufgrund früherer Tests als Fehlerquelle kaum in Frage kommt. Andererseits ist aber auch nicht auszuschließen, dass der Spontanzerfall im betrachteten NV-Zentrum besonderen Bedingungen unterliegt und somit die lange Anstiegszeit τ_2 physikalisch bedingt sein könnte. Beispielsweise könnten Verspannungen am Ort des Zentrums für eine Verschiebung des Seitenzustands 3 sorgen oder aber Änderungen des lokalen \vec{E} -Feldes in der Umgebung des Defekts die Fehlerrate modifizieren [24]. Eine sichere Interpretation des Resultats ist daher zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht möglich, sollte sich aber anhand weiterer Untersuchungen von NV-Zentren ergeben.

Kehren wir zurück zum eigentlichen Experiment. Wie in Abschnitt 3.2.1 erläutert, muß es sich beim Auftreten von Interferenzen an den Ausgängen des MZI notwendig um die einzelner Photonen handeln, wenn sich stets höchstens

eines in den beiden Armen aufhält. Mit Hilfe der $g^{(2)}$ -Funktion lässt sich die bedingte Wahrscheinlichkeit P_c für das Eintreten eines zweiten Photons in das Interferometer innerhalb eines Zeitintervalls $[0, \tau]$ berechnen, wenn zur Zeit $\tau = 0$ schon eines die Apparatur erreicht hat. Mit Gleichung 3.13 folgt

$$P_c(\tau) = \int_0^\tau g^{(2)}(\tau') r_{ges} \left(\frac{1}{\eta_{mzi}} \right) d\tau', \quad (4.7)$$

wobei r_{ges} die gemessene Gesamtzählrate von APD 1 und APD 2 und $0 \leq \eta_{mzi} \leq 1$ die Zählratenverluste zwischen Eintritt in das Interferometer und Detektion des Photons bezeichnet. Die Verluste setzen sich zusammen aus den – allerdings sehr geringen – Reflexionen an optischen Elementen, den Filtertransmissionen sowie Totzeit und Quanteneffizienz der APD's. Eine grobe Abschätzung liefert $\eta \approx 0,25$. Wie sich herausstellt, sind die Wahrscheinlichkeiten P_c selbst für $\eta = 0,001$ nur wenig von Null verschieden. Ein sinnvolles Maß für den Einzelphotonencharakter erhält man, wenn man den Wert P_c zu demjenigen einer klassischen Lichtquelle mit $g^{(2)}(\tau) = 1 = \text{const}$ ins Verhältnis setzt:

$$\delta(\tau_{crit}) \equiv \frac{1}{\tau} \cdot \int_0^\tau g^{(2)}(\tau') d\tau', \quad (4.8)$$

Konkret findet man für die Messung in Abb. 4.5 nach Abzug der Dunkelzählrate

$$\delta(\tau_{crit}) \simeq 11\% \quad \text{mit} \quad \tau_{crit} = 1,3 \text{ ns}. \quad (4.9)$$

Dieser Wert besagt, dass die bedingte Wahrscheinlichkeit für die Detektion eines zweiten Photons im Fall der benutzten Einzelphotonenquelle etwa einen Faktor 9 unter derjenigen für einen entsprechend abgeschwächten Laser liegt. Die in Abb. 4.6 dargestellten Oszillationen sind daher auf die Interferenz einzelner Photonen zurückzuführen. Von Interesse ist bei einer derartigen Messung vor allem der Kontrast oder die Sichtbarkeit der Interferenzen. Denn je näher diese bei 100% liegt, desto weniger kann über den Weg des Photons etwas ausgesagt werden, da dazu beide Wege gleichwahrscheinlich sein müssen (vgl. Kap. 2). V_{max} bezeichnet den maximalen Interferenzkontrast, der für den Gangunterschied $\Delta x = 0$ auftritt. Auf die Methode zur Bestimmung von V_{max} soll erst im nächsten Abschnitt eingegangen werden, es sei daher hier nur das Ergebnis mitgeteilt:

$$V_{max} = 95,8 \pm 0,6\%. \quad (4.10)$$

Wie die Auswertung weiter ergibt, beträgt die der Trägerfrequenz entsprechende Oszillationsperiode $\Omega = 703 \text{ nm}$. Der Wert stimmt im Rahmen der experimentellen Fehler mit dem nach dem Spektrum (Abb. 4.2) zu erwartenden Linienschwerpunkt von 708 nm überein. Betrachtet man schließlich die Längenskala,

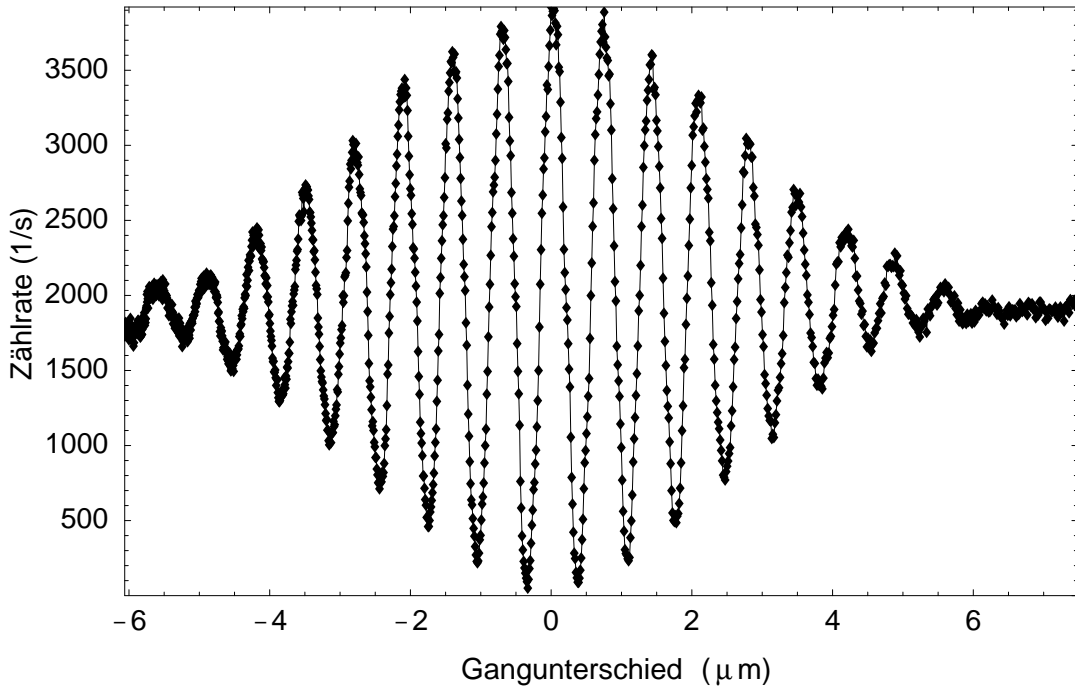


Abbildung 4.6: Interferenzen des NV-Fluoreszenzlichts bei geringer Pumpleistung, die durchgezogene Linie dient als Sichthilfe.

auf der die Interferenz verschwindet, so liest man aus Abb. 4.6 etwa $11\text{-}12\ \mu\text{m}$ ab. Dieser Wert ist mit der (doppelten) Kohärenzlänge $2 \cdot L_{coh} \approx 11\ \mu\text{m}$ des von den NV-Zentren ausgesandten Lichts zu vereinbaren.

Wie eingangs erwähnt, gilt es noch zu demonstrieren, dass der Einzelphotonencharakter durch das Interferometer nicht beeinflusst wird. Abb. 4.7 zeigt die Korrelationsfunktion, gemessen an den beiden Ausgängen des Interferometers. Der Gangunterschied zwischen beiden Armen wird dazu auf einen geeigneten Wert innerhalb der Kohärenzlänge fixiert, so dass die Zählraten der beiden Detektoren in etwa ausgeglichen sind. Die Tatsache, dass die Korrelation für $20\ \text{ns} \leq \tau \leq 40\ \text{ns}$ höhere Werte als im ersten Histogramm (Abb. 4.5) annimmt, kann z. T. auf die schlechte Statistik oder etwas höhere Pumpleistungen im Rahmen der Toleranzgrenzen zurückzuführen sein. Der Einbruch beträgt $g^{(2)}(0) = 40\%$, in Übereinstimmung mit der rechnerischen Erwartung von 41% . Unter Abzug der Dunkelzählrate wäre demnach mit $g^{(2)}(0) = 6,6\%$ zu rechnen. Weiterhin ändert sich δ gegenüber dem zuvor beschriebenen elementaren HBT-Experiment nicht allzu stark. Zusammen mit der Zeitkonstanten τ_2 , die mit $16 \pm 10\ \text{ns}$ auch hier über dem Normalen liegt, bestätigt sich damit die Erwartung, dass die beiden

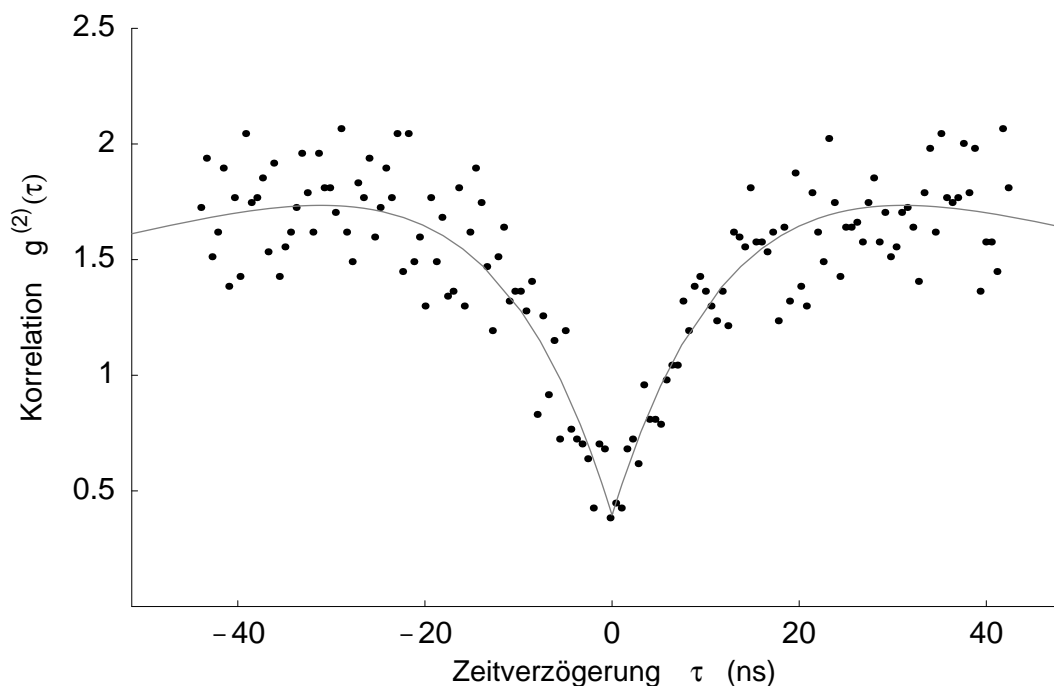


Abbildung 4.7: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 35% der Sättigungsleistung, aufgenommen durch das Interferometer.

$g^{(2)}$ -Funktionen im Rahmen der Fehlergrenzen übereinstimmen sollten.

4.2.2 Anregung nahe der Sättigungsleistung

Mit wachsender Pumpintensität nimmt erwartungsgemäß die Emissionsrate des NV-Zentrums zu und damit die Einzelphoton-Wahrscheinlichkeit im MZI ab. Man erhält aus dem Fit $g^{(2)}(0) = 27\%$, wohingegen aus der gemessenen Hintergrundstrahlung ein theoretisch möglicher Wert von 21% resultiert. Obwohl die Anstiegszeit von $8,3 \pm 1$ ns noch relativ groß erscheint, könnte sich hier bereits die Zeitunschärfe der APD's von ca. 1,4 ns [11] bemerkbar machen. Nach Abzug der Dunkelzählrate erhält man $g^{(2)}(0) \leq 15\%$ (je nach tatsächlichem Hintergrund) und damit $\delta \approx 22\%$. Wie angekündigt, soll in diesem Abschnitt das Augenmerk verstärkt auf die Auswertung und Analyse der Interferenzmessung gelegt werden. Dies erscheint zunächst plausibel, da das Spektrum in Abb. 4.2 bei dieser Intensität aufgenommen wurde und so ein unmittelbarer Vergleich möglich erscheint. Wie sich aber zeigt, besteht zwischen den Interferenzmustern bei den verschiedenen Intensitäten, abgesehen von der Zählrate, kein wesentlicher Unterschied, so dass nachfolgende Aussagen übertragbar sind.

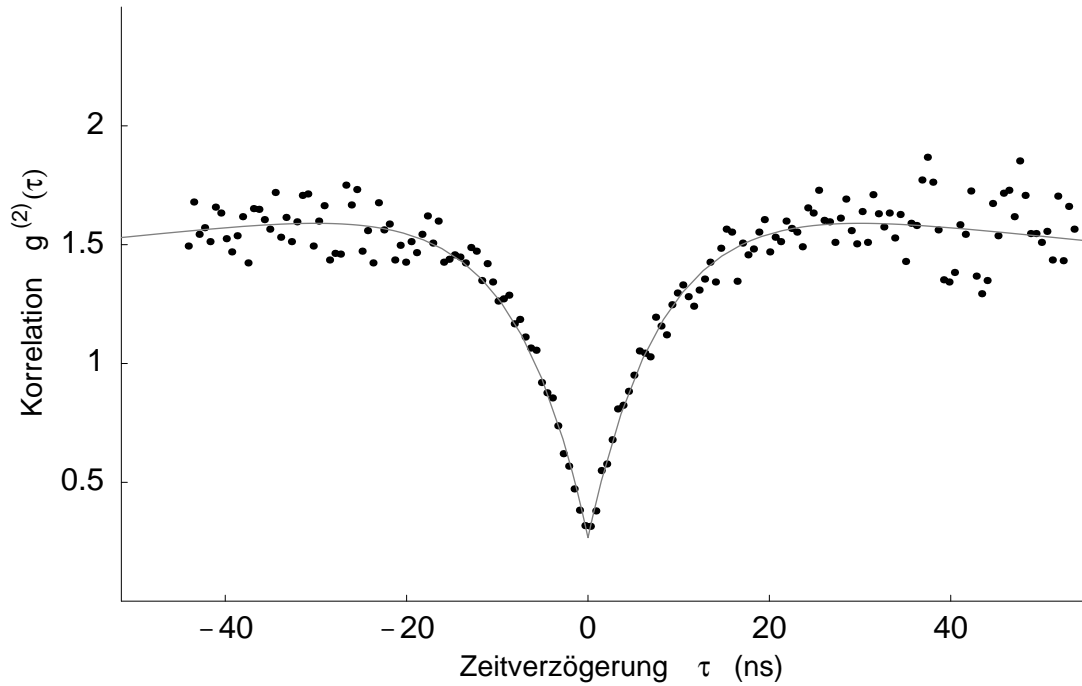


Abbildung 4.8: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 1,7-facher Sättigungsleistung in reiner HBT-Konfiguration

Abb. 4.10 zeigt das Resultat der Messung bei 1,7-facher Sättigungsleistung. Die wesentlichen Parameter einer solchen Kurve sind die dem spektralen Linienschwerpunkt entsprechende Oszillationsperiode λ_0 und der Kontrast $V(\Delta x)$. Aufgrund der leichten Asymmetrie des vom Filter RG 645 beeinflussten Spektrums erscheint es nicht sinnvoll (und führt auch nicht zum Erfolg), für den Fit von einem gaussförmigen Spektrum auszugehen. Statt dessen wird zunächst die Einhüllende der Interferenzen durch kubische Spline-Funktionen mit den Minima bzw. Maxima als Stützstellen numerisch approximiert (vgl. Abb. 4.9). Aus den Splines erhält man mit der Definition von $V(\Delta x)$ ¹ die ungefähre Kontrastfunktion V_s , wie sie Abb. 4.11 links dargestellt ist. Deren Verlauf ist noch durch unnatürliche Ecken gekennzeichnet und auch der abrupte Abfall auf $V_c(\Delta x) = 0$ bei $\Delta x \approx \pm 6 \mu\text{m}$ ist eine Folge des kurzen Interpolationsbereichs. Der Verlauf von $V(\Delta x)$ wird durch den nun durchgeführten Cos-Fit geglättet, wie in Abb. 4.9 zu erkennen ist. Der Fit folgt dem Modell

$$r(\Delta x) = r_0 + a V_s(\Delta x) \cos \left(2\pi \frac{\Delta x}{\lambda_0} + \gamma_0 \right) \quad (4.11)$$

¹gegeben als der Quotient aus Differenz und Summe der beiden Splines

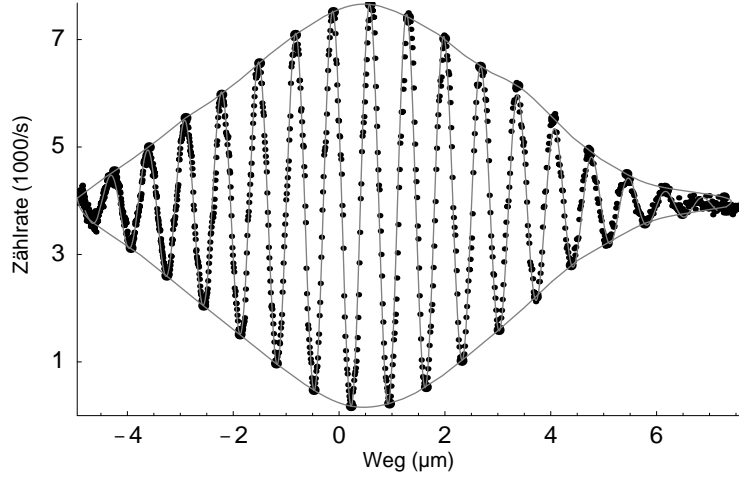


Abbildung 4.9: Zählrate am Ausgang des MZI, abhängig vom Wegunterschied der Arme. Aus diesen Daten wird der Interferenzkontrast mittels Splinemoduliertem, gewichtetem cos-Fit bestimmt.

für die Zählrate r von APD 1 mit Fitparametern r_0 , a , λ_0 und γ_0 . Mit der Phase γ_0 werden Abweichungen der Position des maximalen Kontrastes von $\Delta x = 0$ berücksichtigt, die nach dem Fit korrigiert werden (vgl. Abb. 4.9 und 4.10). Zur statistisch korrekten Verarbeitung der Messdaten ist es erforderlich, die Raten $r_i(\Delta x_i)$ mit ihrem inversen Fehler $(1/\sigma_i)^2 = 1/r_i$ zu gewichten. Der gesamte Maximalkontrast errechnet sich dann zu

$$V_{max} = V(\Delta x = 0) = \frac{a}{r_0} V_s(\Delta x = 0). \quad (4.12)$$

Im vorliegenden Fall findet man $V_{max} = 96,2 \pm 0,5\%$ und λ_0 ergibt sich zu 700 nm, ein geringfügig kleinerer Wert als im Fall niedriger Pumpintensität. Ferner erkennt man in Abb. 4.9 für $\Delta x > 4 \mu\text{m}$ eine systematische Abweichung von rund $(1/10)\lambda$ der gemessenen Wellenlänge vom Cos-Fit. Der Effekt war bei allen derartigen Messungen zu beobachten. Er kann möglicherweise mit dem Strahlversatz durch das Phasenschieberplättchen erklärt werden, der bei großen Winkeln ϕ den Interferenzkontrast der Stabilisierung und so das Fehlersignal beeinflussen kann.

Gemäß den Ausführungen in Kapitel 2 sollte die Kontrastfunktion $V(\Delta x)$ im Prinzip die Fouriertransformierte des Spektrums darstellen. Um also die Konsistenz der Interferenzmessung mit der Erwartung zu prüfen, wird $V_s(\Delta x)$ mittels FFT transformiert. Abb. 4.11 zeigt rechts das Resultat, näherungsweise durch eine Gaussfunktion angepasst und zum Vergleich zusammen mit dem Spektrum dargestellt. Die Halbwertsbreite von 71 nm stimmt größenordnungsmäßig mit

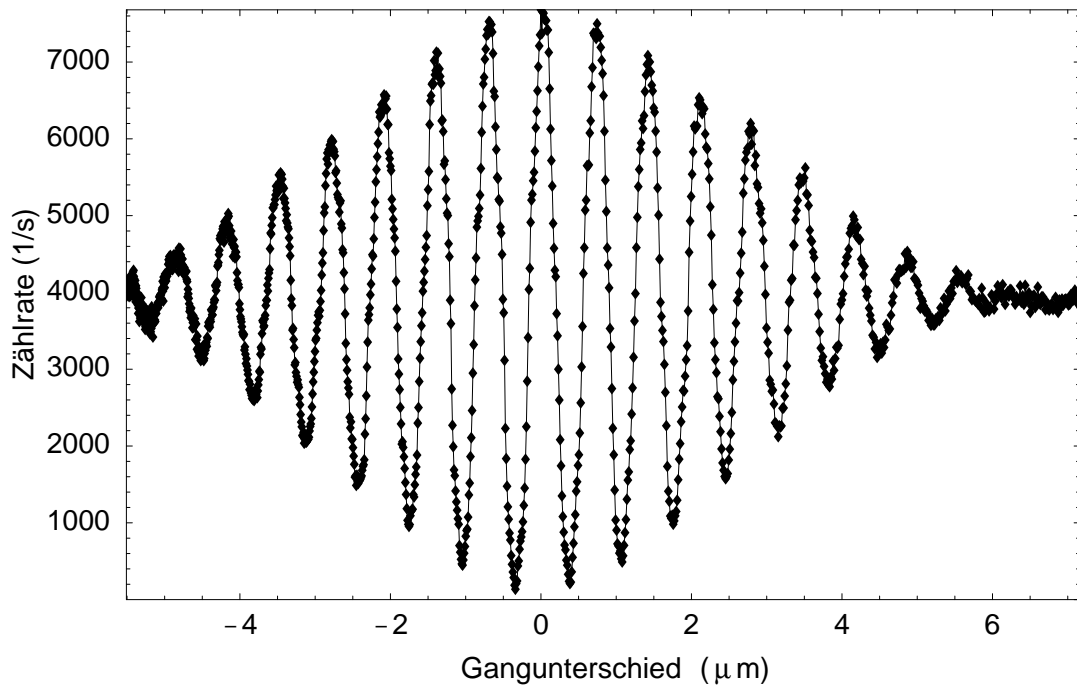


Abbildung 4.10: Interferenzen des NV-Fluoreszenzlichts bei mittlerer Pumpleistung, die durchgezogene Linie dient als Sichthilfe.

der des NV-Spektrums von 84 nm überein². Für die Interferenzmessungen bei den anderen Intensitäten erhält man Breiten der Fouriertransformierten von 74 nm bzw. 79 nm.

An dieser Stelle soll noch kurz auf die Bedeutung der Hintergrundstrahlung eingegangen werden. Abb. 4.13 zeigt links deren (normierte) Interferenz, gemessen unter Verwendung des RG 645-Farbfilters an einer defektfreien Stelle im Kristallinnern. Daneben ist das konventionelle ungefilterte Hintergrundspektrum mit den bei voller Laserleistung dominanten Ramanlinien dargestellt. Zum Hintergrundlicht im Interferometer tragen demnach vermutlich Reste der Ramanstrahlung und bei sehr hoher Pumpleistung evtl. breitbandig fluoreszierende Verunreinigungen bei. Bei niedrigen und mittleren Anregungsintensitäten spielt der Beitrag des Hintergrunds jedoch kaum eine Rolle und wird erst weit in der Sättigung bedeutsam.

Abb. 4.12 zeigt schließlich die Korrelationsmessung, aufgenommen durch das Interferometer. Für den gemessenen Einbruch erhält man $g^{(2)}(0) = 24\%$, was einer akzeptablen Abweichung von der Erwartung von 4% entspricht. Die An-

²Diese wird angenähert ebenfalls über einen Gauss-Fit ermittelt.

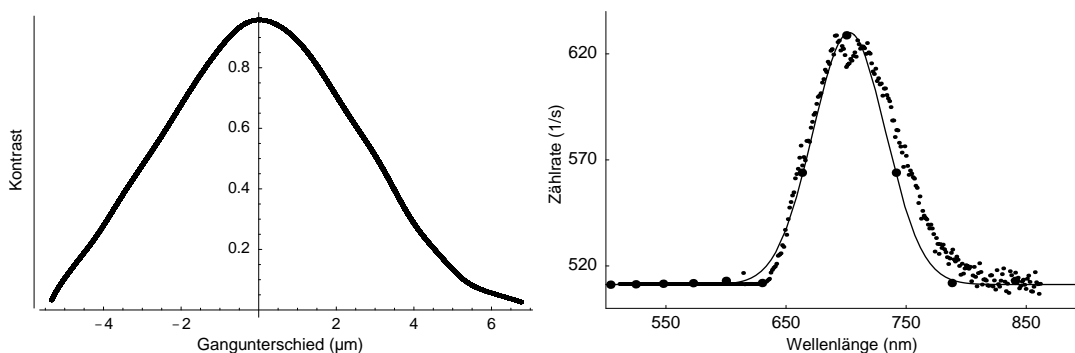


Abbildung 4.11: Empirische Kontrastfunktion des Interferenzmusters (links) und deren numerische Fourier-Rücktransformation (rechts). Linienschwerpunkt und Halbwertsbreite stimmen annähernd mit dem Originalspektrum überein.

stiegszeit τ_2 liegt mit 12 ± 2 ns über dem zuvor angegebenen von 8,3 ns, während die Einzelphoton-Signatur δ mit 20% praktisch gleich bleibt.

4.2.3 Anregung weit über der Sättigungsleistung

Nimmt man ein HBT-Histogramm des NV-Fluoreszenzlichts bei sehr hoher Pumpleistung deutlich in der Sättigung auf, so tritt der steile und starke Anstieg von $g^{(2)}(\tau)$ vom Minimalwert bei $\tau = 0$ hin zu Werten von $g^{(2)}(\tau) = 2$ oder mehr auffällig hervor. Abb. 4.14 zeigt das Resultat einer entsprechenden Messung bei 11-facher Sättigungsleistung. Der Einbruch bei $\tau = 0$ beträgt 39%, wobei die Abweichung gegenüber der rechnerischen Erwartung (34 %) auf die Detektor-Zeitunschärfe zurückzuführen sein dürfte. Offenkundig macht sich diese bei kurzen Anstiegszeiten von wie hier 3,3 ns stärker bemerkbar als im Fall langer Zeitkonstanten ~ 10 ns. Nach Abzug der Dunkelzählraten wäre mit $g^{(2)}(0) \approx 30\%$ zu rechnen, was hauptsächlich auf den bereits merklichen Hintergrundanteil an der Zählrate von ca. 20% zurückzuführen ist. δ liegt jetzt schon bei 68%, da die Wahrscheinlichkeit für die Emission zweier aufeinander folgender Photonen im betrachteten Zeitintervall deutlich zunimmt. Dies verstärkt sich, sobald man zu Zeitabständen von 10-20 ns übergeht. Nach dieser Zeit liegt offenbar eine überdurchschnittliche Wahrscheinlichkeit für das Auftreten des Folgephotons vor. Die Beobachtung lässt sich unter Annahme eines Seitenzustands im Energieschema des NV-Zentrums deuten (Abb. 3.1). Wird das System vom Grundzustand 1 in den angeregten Zustand 2 gepumpt, so tritt mit einer kleinen Rate $k_{23}k_{21}$ ein Übergang nach Niveau 3 auf. Da optische Übergänge von diesem in den Grundzustand spinverboten sind, erfordert ein Fluoreszenzzerfall erst die Rückführung des Systems nach Zustand 2 mit einer ebenfalls relativ kleinen,

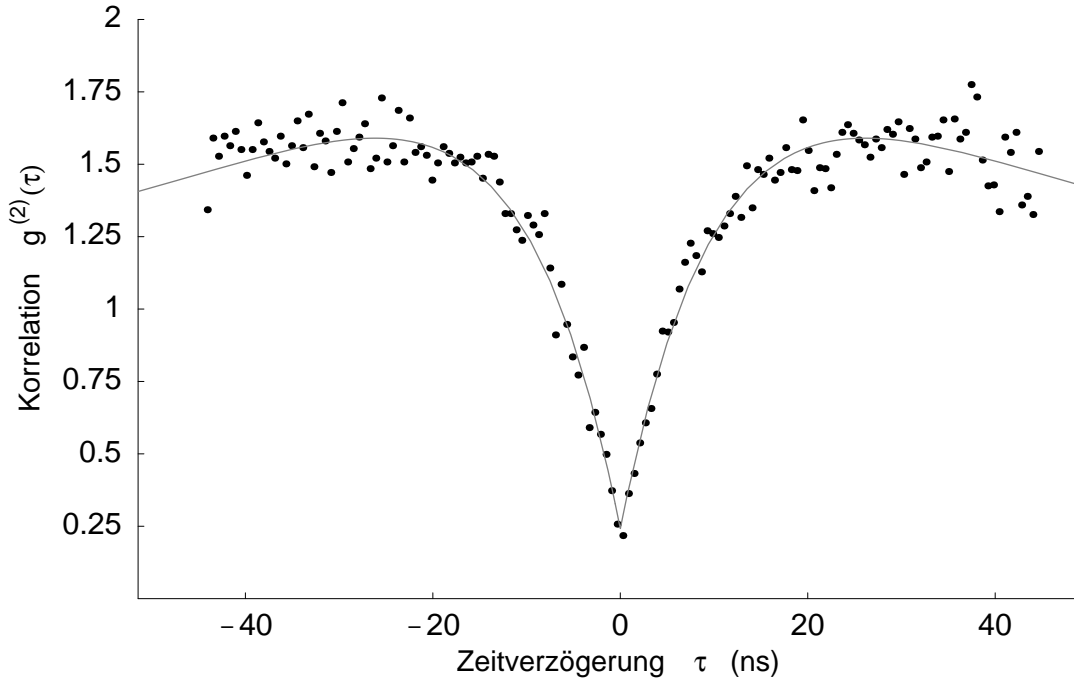


Abbildung 4.12: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 1,7-facher Sättigungsleistung, aufgenommen durch das Interferometer

temperaturabhängigen Rate k_{32} . Fluoreszenzversuche bei tiefen Temperaturen [?] zeigten, dass die Quantenausbeute dort wegen des Zwischenzustands extrem absinkt. Niveau 3 wirkt also wie ein Ablagefach für das elektronische System und wird daher als “shelving state” bezeichnet. Bei Raumtemperatur koppeln die Zustände 2 und 3 thermisch, so dass die Quantenausbeute fast 100% beträgt. Der Einfluss der „Ablage“ 3 macht sich denn auch erst in Korrelationsmessungen der ausgesandten Photonen über die $g^{(2)}$ -Funktion bemerkbar. Die mit zunehmender Pumpleistung wachsende Wahrscheinlichkeit für einen Übertritt nach Zustand 3 verändert nämlich die Besetzung von Niveau 2, ohne dabei einen Fluoreszenzzerfall zu verursachen und so das Rückpumpen zu ermöglichen. Neben einer etwas sinkenden Fluoreszenzrate bei hoher Pumpleistung führt dies zur erhöhten Korrelation zweier aufeinanderfolgender Photonen mit einem Zeitabstand von größenordnungsmäßig 10 ns. Mathematisch drückt sich der Sachverhalt durch eine Ratengleichung für die Besetzungen ϱ_i aus [11]:

$$\begin{pmatrix} \dot{\varrho}_1 \\ \dot{\varrho}_2 \\ \dot{\varrho}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_{12} & k_{21} & 0 \\ k_{12} & -k_{21} - k_{23} & k_{32} \\ 0 & k_{23} & -k_{32} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varrho_1 \\ \varrho_2 \\ \varrho_3 \end{pmatrix}. \quad (4.13)$$

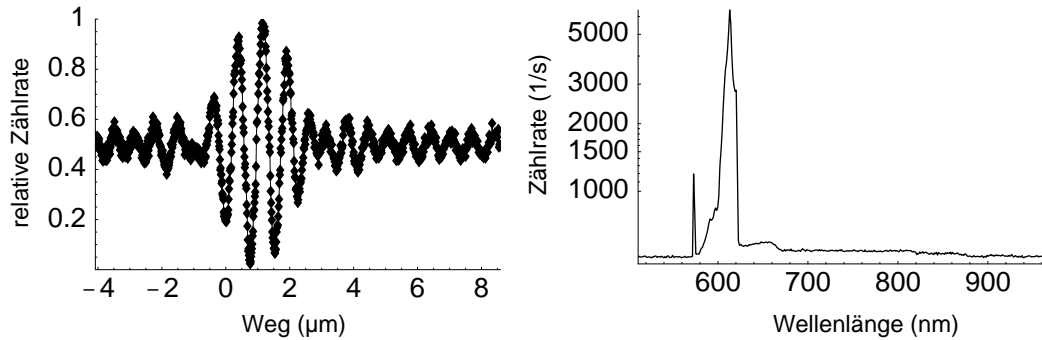


Abbildung 4.13: Analyse der Hintergrundstrahlung im Interferenzexperiment. Links das Interferenzmuster, wie es im „leeren“ Diamantraum zwischen den NV-Zentren gemessen wird; rechts das konventionelle ungefilterte Spektrum an einer solchen Stelle in logarithmischer Auftragung.

Die verbotenen Raten k_{31} und k_{13} werden vernachlässigt. Die Lösung des Gleichungssystems liefert schließlich $g^{(2)}(\tau)$ als normierte Besetzungswahrscheinlichkeit ρ_2 , wie zu Beginn des Kapitels dargestellt. Wie in [11] gezeigt wird, erlaubt dieses Modell eine gute Beschreibung des Fluoreszenzverhaltens von NV-Zentren bei verschiedenen Anregungsintensitäten. Für die Oszillationsperiode der Interferenzmessung (Abb. 4.15) findet man $\lambda_0 = 708$ nm, was mit dem Sollwert übereinstimmt. Der Ramananteil im Spektrum, der zu einer Abnahme von λ_0 führen sollte, macht sich also noch nicht bemerkbar. Möglicherweise wird sein Beitrag durch ein etwas verbreitertes NV-Spektrum kompensiert. Jedenfalls beträgt die Halbwertsbreite der Kontrastfunktion $V(\Delta x)$ nur noch $4,5 \mu\text{m}$ gegenüber $6 \mu\text{m}$ für die beiden niedrigeren Intensitäten. Die Fouriertransformierte weist denn auch die relativ hohe Breite von 79 nm auf. Der Interferenzkontrast ändert sich ebenfalls etwas und liegt bei $95,4 \pm 0,6\%$. Das durch die Interferometeranordnung aufgenommene HBT-Histogramm (Abb. 4.16) liefert einen mit der Vorhersage kompatiblen Einbruch von 47% und eine Anstiegszeit von $3,7 \pm 0,3$ ns. Der Einbruch würde unter Abzug der Dunkelzählrate auf 41% abnehmen, was zusammen mit dem Parameter $\delta \approx 68\%$ den Einzelphotonencharakter auch noch unter diesen Versuchsbedingungen belegt.

4.2.4 Diskussion

Fasst man die wichtigsten Erkenntnisse aus den Messungen zusammen, so lässt sich folgendes festhalten: Unter Verwendung eines Mach-Zehnder-Interferometers und zweier HBT-Anordnungen wird die Interferenz einzelner Photonen gezeigt.

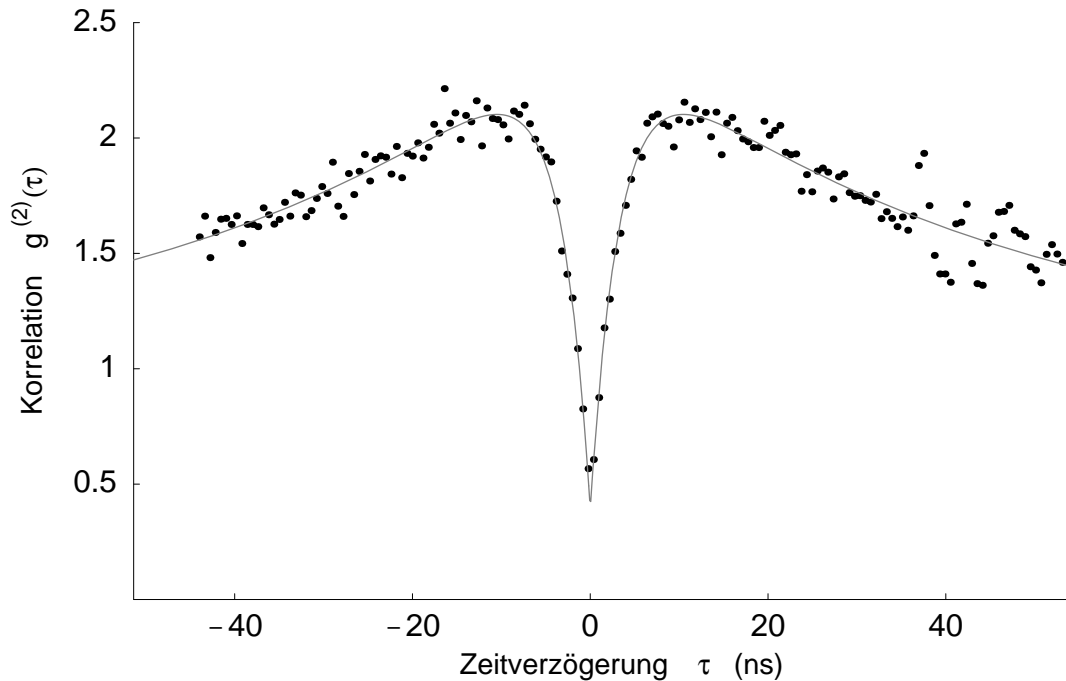


Abbildung 4.14: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 11-facher Sättigungsleistung in reiner HBT-Konfiguration.

Der prinzipielle Unterschied zwischen den beiden HBT-Experimenten besteht darin, dass im ersten Fall die Detektoren zusätzlich zum Einzelphotonennachweis Welcher-Weg-Information bzgl. der Position der Photonen hinter dem ersten Strahlteiler abfragen und so die Superposition (2.28) als Voraussetzung für Interferenz zerstören. Im MZI-Aufbau verzichtet man dagegen auf die Bestimmung des „wirklichen“ Photonenweges. Im weiteren wird statt dessen durch die Bestimmung von $g^{(2)}(\tau)$ an den Ausgängen des MZI der Einzelphotonencharakter des interferierenden Lichts demonstriert. Die Kohärenz der überlagerten Teilstrahlen wird durch eine solche Messung nicht gestört und die Interferenzfähigkeit bleibt erhalten. Es ist aber nicht möglich, mit ein- und derselben Messvorrichtung sowohl den Weg des Photons in Form des Amplitudenquadrats als auch Interferenz als Folge einer festen Phasenbeziehung zu beobachten. Diese grundlegende Eigenschaft des Komplementaritätsprinzips konnte mit den vorgestellten Experimenten demonstriert werden.

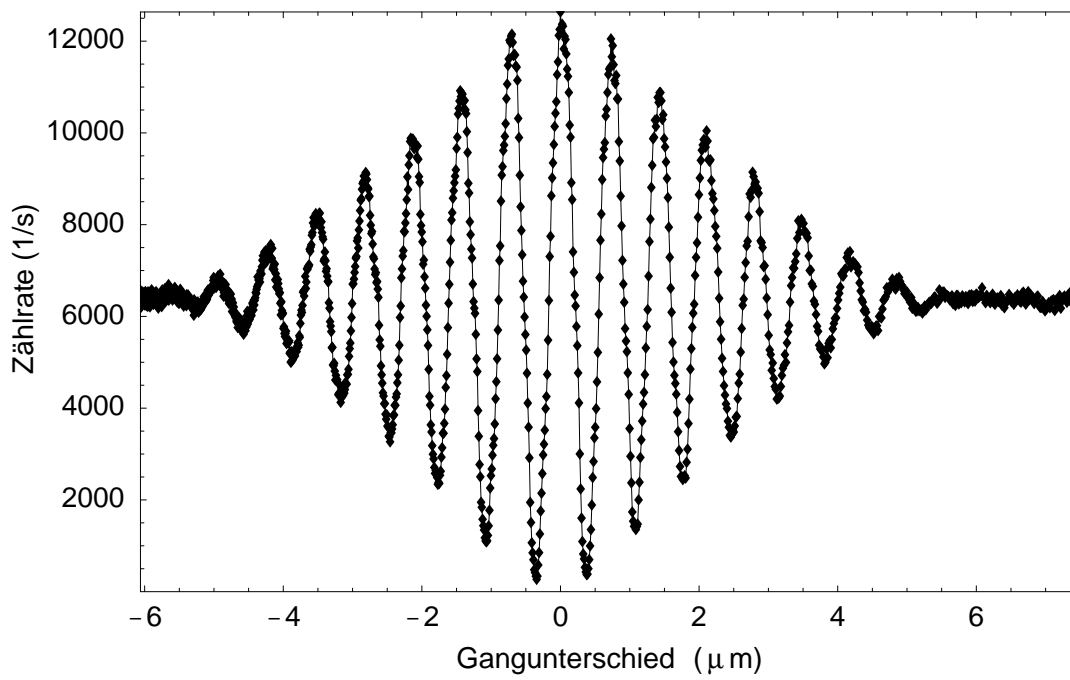


Abbildung 4.15: Interferenzen des NV-Fluoreszenzlichts bei hoher Pumpleistung, der Ramananteil ist nicht mehr vernachlässigbar.

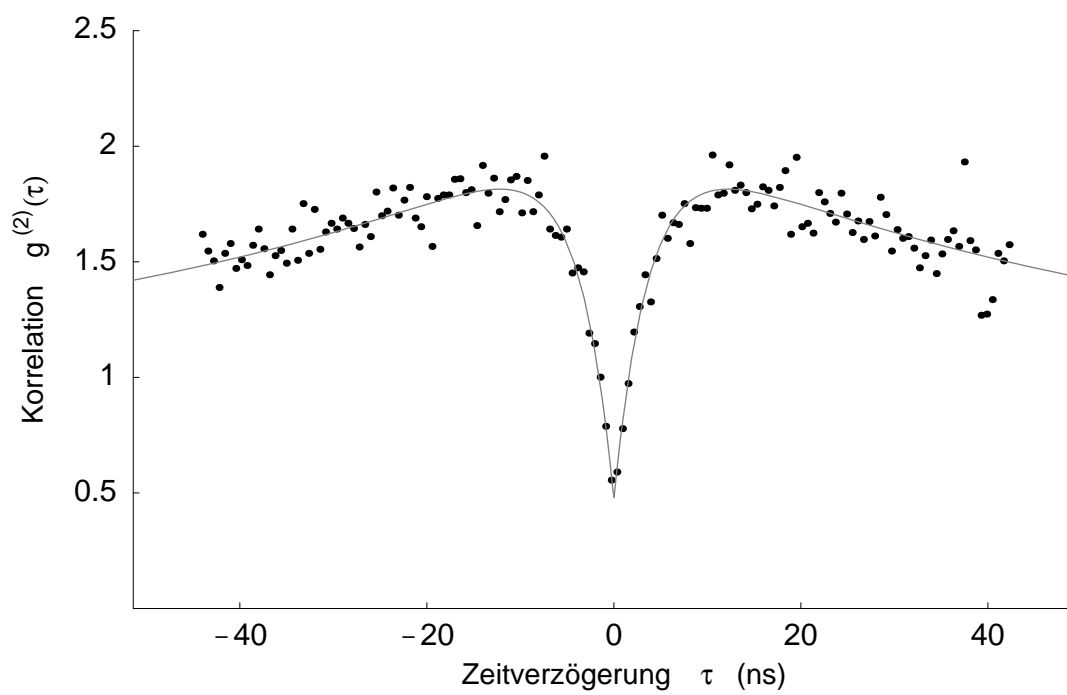


Abbildung 4.16: $g^{(2)}(\tau)$ bei ca. 11-facher Sättigungsleistung, aufgenommen durch das Interferometer.

Teil II

Einzelne Photonen für die Quantenkommunikation

Kapitel 5

Möglichkeiten und Ziele

Der erste Teil dieser Diplomarbeit veranschaulichte anhand der Interferometrie einzelner Photonen die Komplementarität als grundlegendes Prinzip der Quantenmechanik. Die zur Durchführung des Experiments erforderliche Einzelphotonenquelle stand dabei nicht im Mittelpunkt der Diskussion, sondern wurde als gegeben vorausgesetzt. Insbesondere wurde nur flüchtig darauf eingegangen, warum ausgerechnet das NV-Zentrum in Diamant verwendet wurde. Schließlich stehen den Vorteilen – leichte Verfügbarkeit, Stabilität und v. a. einzelne Detektierbarkeit – problematische Eigenschaften gegenüber: Die große spektrale Bandbreite, der den Rückpumpprozess beeinträchtigende Zwischenzustand und die magere Aufsammeleffizienz von weniger als 0,1%. Diese Merkmale haben im zuvor durchgeführten Experiment nicht gestört, erscheinen als offenkundige Nachteile, betrachtet man das NV-Zentrum unter dem Aspekt einer möglichen Anwendung als Kryptographie-Sender. Es erscheint daher sinnvoll, den grundsätzlich vielversprechenden Ansatz der festkörperbasierten Einzelphotonenquelle im Hinblick auf einen solchen Einsatz weiter zu verfolgen und zu verbessern. Wir wenden uns zunächst dem Festkörper „Diamant“ als solchem zu und gehen der Frage nach, welche Perspektiven sich daraus im Hinblick auf unser Ziel ergeben. Im Anschluss wird ein kurzer Überblick über die physikalisch-technischen Anforderungen an einen festkörperbasierten Kryptographie-Sender gegeben.

5.1 Punktdefekte in Diamant

Schon aufgrund statistischer Fehler und diverser Verunreinigungen im Wachstumsprozess treten in jedem kristallinen Festkörper Abweichungen von der idealen Gitterstruktur insbesondere in Form von Punktdefekten auf. Derartige Inhomogenitäten atomarer Größe führen lokal zu einer geänderten elektronischen

Dichteverteilung und damit zur Ausbildung neuer Energieniveaus am Ort dieses Defekts. Aufgrund der gewöhnlich entstehenden Asymmetrie und des damit verbundenen Dipolmoments sind viele Zentren optisch aktiv. Der Gedanke, einzelne derartige Störstellen als optische Quantenemitter zu nutzen, besitzt vor allem deshalb einen besonderen Reiz, weil das umgebende Kristallgitter gewissermaßen als natürliche „Falle“ für den Defekt wirkt. Man erwartet sich davon zu Recht¹ einen wesentlich einfacheren Aufbau bei gleichzeitig herausragender Betriebssicherheit gegenüber vergleichbaren Ansätzen, wie sie in Kapitel 1 erwähnt wurden. Offenbar können nur in Halbleitern mit genügend großer Bandlücke (Quasi-Isolatoren) Punktdefekte mit vollständig gebundenen Elektronen-Zuständen und Übergängen im optischen Spektralbereich existieren. Unter diesem Gesichtspunkt stellt Diamant die erste Wahl dar. Neben einer Bandlücke von 5.45 eV und der damit verbundenen breiten optischen Transparenz zeichnet diesen Stoff vor allem seine enorme interatomare Bindungshärte aus, die die Diffusion der anzuregenden Punktdefekte weitgehend unterbindet. Die Tabelle stellt einige weitere, für diese Arbeit relevante Eigenschaften von Diamant zusammen. Während wie gesagt optische Transparenz und Härte für die Verwendung von Diamant als Trägersubstanz sprechen, besitzen manche Eigenschaften auch ambivalenten oder gar nachteiligen Charakter.

Einige Eigenschaften von Diamant	
mechanische Härte	90 GPa (Mohshärte 10)
thermische Leitfähigkeit	$2 \cdot 10^3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ bei 300 K
therm. Ausdehnungskoeffizient	$1 \cdot 10^{-6}$ bei 300 K
optische Transparenz	250 nm (UV) bis über 50 μm (FIR)
elektrischer Widerstand	$10^{13} \Omega$
Brechungsindex	$\simeq 2,41$
chemische Reaktivität	inert ²
Bindungsart	4-fach kovalent (tetraedische Hybridbindung)
Gitterkonstante	0,3567 nm bei 300 K
atomare Dichte	$1,77 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$
Ramanfrequenz	1332 cm^{-1}

Zum Beispiel erweist sich die unübertroffene Abriebfestigkeit zusammen mit dem großen Brechungsindex als ernstes Hindernis bei dem Versuch, die Aufsammeleffizienz zu verbessern. Um den durch die Totalreflexion bei $24,5^\circ$ festgelegten Raumwinkel zu vergrößern, wären ja unter Zugrundelegung der Strahlenoptik gekrümmte Flächen nötig. Einer leichten Bearbeitung der Oberflächen

¹siehe als Beispiel das NV-Zentrum

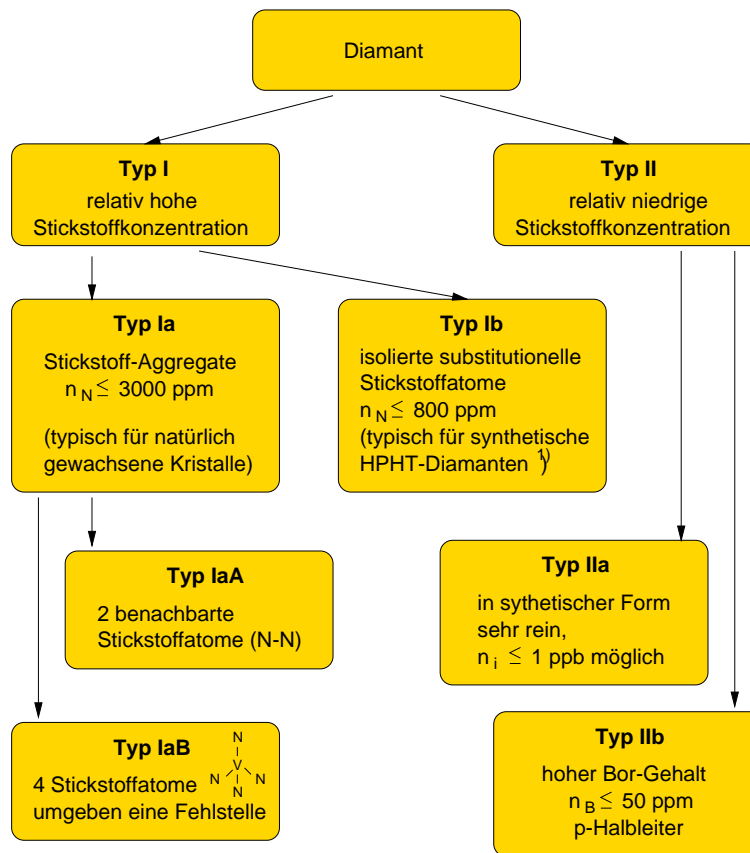
steht ferner die beispiellose chemische Widerstandsfähigkeit entgegen. Es sollte noch erwähnt werden, dass bei 300 K und Normaldruck Diamant die metastabile Form kondensierten Kohlenstoffs darstellt, die unter Zufuhr einer genügend großen Aktivierungsenergie in den stabilen Graphit übergeht. Diese Tatsache spielt im Zusammenhang mit der noch zu besprechenden CVD-Technik und diversen Dotierverfahren eine Rolle.

Es ist jedoch vor allem die Vielfalt der optisch aktiven Zentren – bisher sind über 500 verschiedene bekannt - begünstigt durch die große Bandlücke, die Diamant trotz der genannten Hindernisse als Basismaterial für eine Festkörpereinzelphtonenquelle so attraktiv erscheinen lässt. Aufgrund der großen technischen Bedeutung des Stoffs sind glücklicherweise viele Defekte und ihre Eigenschaften relativ gut erforscht. Wie sich herausstellt, lassen sich natürliche wie synthetische Diamanten hinsichtlich ihrer defektinduzierten optischen Eigenschaften grob nach dem Schema in Abb. 5.1 klassifizieren. Stickstoff und Bor stellen wegen ihrer geringen Größe und im Fall von Stickstoff auch aufgrund seiner häufigen Anwesenheit beim Wachstumsprozess demnach die dominanten Verunreinigungen in Diamant dar. Die Bildung von Punktdefekten beschränkt sich jedoch keineswegs auf Kombinationen dieser beiden Elemente, vielmehr bilden auch Phosphor (P), Chrom (Cr), Nickel (Ni), Silizium (Si), Sauerstoff (O), Kobalt (Co) und viele weitere Elemente lumineszierende Zentren, häufig unter Einbeziehung einer oder mehrerer Fehlstellen. Gleichwohl liegt dem Absorptions- und Emissionsprozess im Prinzip meist der gleiche Mechanismus zugrunde, der oft stark vereinfacht in der Born-Oppenheimer-Näherung³ dargestellt wird. Der oder die Atome des Defekts sind in Grund- und Anregungszustand näherungsweise harmonisch gebunden, wobei die relative Koordinate q aufgrund unterschiedlicher Elektronenkonfiguration variiert. Elektromagnetisch induzierte Übergänge treten hauptsächlich zwischen dem vibronischen Grundzustand ($v_i = 0$) des elektronischen Ausgangsniveaus und einem Schwingungszustand v_f des jeweiligen Endniveaus $|f\rangle$ auf. Die einzelnen, von v_f abhängigen Übergangswahrscheinlichkeiten $P(v_f)$ sind dem Betragsquadrat des Dipolmatrixelements $\hat{\mathbf{D}}_{if}$

$$P(v_f) \propto \left| \hat{\mathbf{D}}_{if} \right|^2 = |\langle f | -e\hat{\mathbf{r}} | i \rangle|^2 \quad (5.1)$$

proportional und bestimmen das Spektrum. Der Null-Phononen-Übergang mit $v = 0$ in $|f\rangle$ vollzieht sich dabei ohne Beteiligung von Schwingungen und äußert sich gewöhnlich in einer scharfen lorentzförmigen Linie, deren Breite durch die Zerfallszeit gegeben ist. Daneben tritt wie z. B. beim NV-Zentrum eine mehr oder weniger ausgeprägte vibronische Verbreiterung auf, die sich aus der inhomogenen Überlagerung mehrerer Schwingungsmoden und auch deren Wechsel-

³bzgl. der Einzelheiten sei auf die einschlägige Literatur verwiesen, z. B. [27].



1) "High Pressure High Temperature", Herstellungsverfahren für synthetische Diamantkristalle

Abbildung 5.1: Klassifikation von Diamanten nach ihren dominanten Verunreinigungen

wirkungen ergibt. Insbesondere kommt es leicht zu Kopplungen zwischen defektinduzierten Schwingungszuständen und Phononen des umgebenden Kristallgitters. Von besonderem Interesse für unsere Ziele ist dagegen der weniger häufige Fall, dass die Eigenfrequenzen der Defektmoden die maximal mögliche Phononenfrequenz (nämlich die Ramanfrequenz) im Diamantkristall übersteigen und somit keine Kopplung mehr auftreten kann. Es bilden sich dann sog. lokale Schwingungsmoden aus, die kaum mit ihrer „Umwelt“ in Kontakt stehen. Diese Situation ist typisch für Defekte, die auf auf Zwischengitterplätzen liegen. Die Spektren solcher Zentren können ausgesprochen schwache Schwingungsverbreiterungen aufweisen, eine Tatsache, deren Bedeutung noch klar werden wird.

Zuvor gehen wir jedoch noch kurz auf den Zerfallsprozess an sich ein. Im einfachsten Fall erfolgt der spontane Übergang stets auf optischem Weg unter Aussendung eines Photons. Die Zerfallszeit ist dann durch die Strahlungslebensdauer

$$\frac{1}{\tau_0^{rad}} = \frac{4}{3}n(\Delta E_{if})^3 |\hat{\mathbf{D}}_{if}|^2 \quad (5.2)$$

gegeben [?]. Hier bedeuten $n = 2, 4$ den Brechungsindex von Diamant, ΔE_{if} die Übergangsenergie und $\hat{\mathbf{D}}_{if}$ das Dipolmatrixelement. Alternativ zum strahlenden Übergang ist in manchen Defekten aber auch eine strahlungslose Relaxation z. B. durch vollständige Abgabe der Energie an das umgebende Gitter oder benachbarte Defekte möglich. Dadurch reduziert sich zunächst die Fluoreszenzquantenausbeute

$$\eta = \frac{\#(\text{Fluoreszenzquanten})}{\#(\text{absorbierte Quanten})} \leq 1, \quad (5.3)$$

da nun nicht mehr alle „Pump-Photonen“ in Fluoreszenzlicht konvertiert werden. Ferner nimmt die effektive Lebensdauer des angeregten Zustands gemäß

$$\frac{1}{\tau_0} = \frac{1}{\tau_0^{rad}} + \frac{1}{\tau_0^{nr}}, \quad (5.4)$$

ab, wobei $1/\tau_0^{nr}$ die Rate der nichtstrahlenden Prozesse angibt. Da weiter $\eta = \tau_0/\tau_0^{rad}$ gilt, ermöglichen nichtstrahlende Zerfallskanäle also einerseits eine um einen Faktor η^{-1} erhöhte Rückpumprate, vermindern die pro Pump-Zerfallszyklus emittierte Photonenzahl aber ebenso um den Faktor η .

Die vorstehenden Ausführungen vermitteln einen groben Eindruck von den vielfältigen Einflüssen, denen defektinduzierte Lumineszenz in Diamant unterliegen kann. Diese äußern sich in einer großen Bandbreite unterschiedlicher optisch aktiver Zentren, von denen sich dementsprechend einige mehr, andere weniger gut als Photonenquelle für die Quantenkommunikation eignen werden.

5.2 Anforderungen an einen Krypto-Sender

Wir kommen nach dieser vorbereitenden Diskussion jetzt zu den konkreten physikalisch-technischen Kriterien, die eine derartige Einzelphotonenquelle erfüllen sollte, um in der Quantenkryptographie Verwendung zu finden. An dieser Stelle soll eine knappe Aufzählung der verschiedenen Faktoren genügen, wobei die Reihenfolge in etwa ihrer Priorität entspricht.

- *Stabilität.* Die Quelle muß aus praktischen Gründen einen zeitlich unlimitierten Betrieb bei gleichbleibender Emissionsrate erlauben. Ferner ist eine räumliche Stabilität des Defekts im Kristallgitter zu fordern, um Anregung und Detektion zu erleichtern.

- *passende Wellenlänge.* Als Übertragungsmedium fungiert auf großen Distanzen meist die Glasfaser. Deren Eigenfluoreszenz schließt Lumineszenzzentren im blauen und grünen Spektralbereich aus. Die bescheidene Nachweiseffizienz von Infrarotdetektoren schränkt das in Frage kommende Farbfenster auf den roten und nahen infraroten Spektralbereich ein:

$$600nm \leq \lambda \leq 850nm. \quad (5.5)$$

- *schmales Spektrum.* Man benötigt eine spektrale Bandbreite von wenigen nm. Andernfalls tritt bei langen Übertragungsstrecken in der Faser Dispersion auf, die die zeitliche Reihenfolge der Photonen und die Signal-Untergrund-Justierung beeinträchtigt.
- *kein Hintergrund.* Nur bei (nahezu) 100%-iger Einzelphotonen-Emission lässt sich der Schlüssel abhörsicher übertragen.
- *kurze Zerfallszeit.* Mit einem schnellen Übergang im Bereich von $\tau \sim 1$ ns lassen sich hohe Übertragungsraten erzielen.
- *Raumtemperaturfähigkeit.* Eine Kühlung im Kryostat erhöht den technischen Aufwand und die Betriebskosten beträchtlich. Auch eine mäßige Kühlung durch Peltierelemente kann Komplikationen mit sich bringen (Vereisung).
- *Möglichkeit zur gezielten Produktion.* Entscheidend ist eine passende Dichte, um einzelne Defekte finden und anregen zu können. Zudem muß der Wirtskristall eine extrem hohe Reinheit im betrachteten Spektralbereich besitzen.
- *keine störenden Seitenzustände.* Im NV-Zentrum beeinträchtigt ein solcher Seitenzustand die Photonenstatistik und ist daher unerwünscht.
- *Polarisation.* Eine möglichst ausgeprägte natürliche Polarisation verringert den Ausschuss bei der folgenden Präparation der Polarisationszustände im Sendemodul (ALICE).
- *gerichtete Emission.* Die emittierte Strahlung soll zwecks hoher Übertragungsraten möglichst effektiv ausgekoppelt werden. Dazu muß die Winkelverteilung der Fluoreszenz beeinflusst werden.
- *„on demand“.* Idealerweise soll die Photoemission vollständig kontrollierbar sein, also in festen Zeitabständen τ_{id} erfolgen. Als Intensitätskorrelation würde man in diesem Fall bei gepulster Anregung eine kammartige Struktur erhalten (siehe Abb. (5.2)).

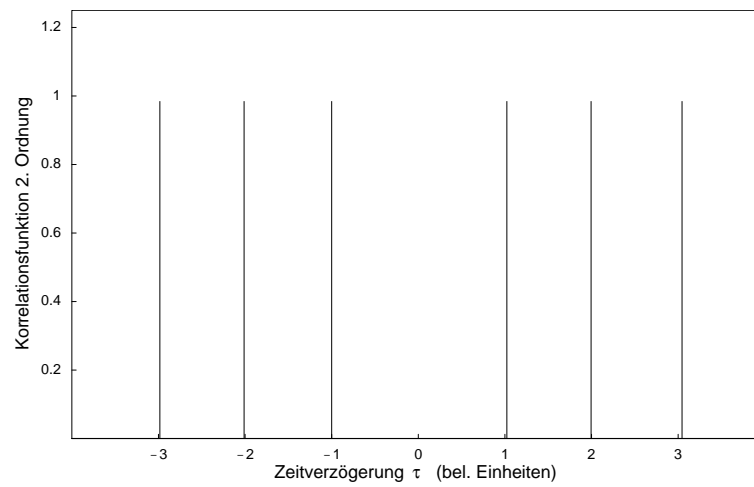


Abbildung 5.2: Idealfall der Korrelation einer perfekten Einzelphotonenquelle mit festem Photonenabstand τ_{id} . Die Spitzen bei $|\tau/\tau_{id}| \geq 2$ sind eine Folge des Messverfahrens im HBT-Aufbau.

Im Verlauf der beiden nächsten Kapitel werden obige Punkte speziell im Bezug auf die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen diskutiert.

Kapitel 6

CVD-Diamant als kontrollierbares System

Eine nähere Betrachtung der soeben aufgelisteten Kriterien zeigt, dass sich einige ausschließlich auf die atomaren Eigenschaften des verwendeten Punktdefekts beziehen und damit unveränderlich sind, während andere wie z. B. „Hintergrund“ oder „Emissionsrichtung“ über Abmessungen und Form des verwendeten Kristalls sowie den experimentellen Aufbau günstig manipuliert werden können. Auch das vorhandene Potential zur Miniaturisierung kann durch eine geschickte technische Implementierung genutzt werden. Da sich Diamant mechanisch und chemisch nur schlecht bearbeiten lässt, wird man versuchen, den Trägerkristall bereits in der gewünschten Struktur herzustellen. Dazu bedient man sich einer Technologie, die als „chemische Abscheidung aus der Gasphase“ (engl. chemical vapour deposition) bezeichnet wird und seit ihrer Erfindung 1968 intensiv weiterentwickelt wird. Der erste Abschnitt behandelt in knapper Form die Grundlagen der CVD-Technologie und ihre Vorzüge hinsichtlich eines möglichen Einsatzes in der Einzelphotonenquelle. Im zweiten Abschnitt werden eigene – in erster Linie spektroskopische – Messungen an CVD-Schichten vorgestellt, diskutiert und daraus Konsequenzen für das weitere Vorgehen gezogen.

6.1 Grundlagen der CVD-Technologie

Als unter thermodynamischen Normalbedingungen stabile Phase von Kohlenstoff kann Graphit nur unter Hochdruckkompression bei $T > 2000$ K in Diamant umgewandelt werden. Diese Tatsache bildet die Grundlage der „High Pressure High Temperature“-Synthese (HPHT), die industriell zur Herstellung von größeren Diamantkristallen dient¹. Demgegenüber gelingt die Abscheidung von

¹Auch der als Träger für die NV-Zentren aus Teil I fungierende Kristall wurde so erzeugt.

Diamant aus einer C-haltigen „Gaswolke“ nach dem CVD-Verfahren bereits bei 700°C - 1000°C und wesentlich geringerem Druck als im HPHT-Verfahren². Das Grundprinzip besteht darin, dass ein C-haltiges Gas (gewöhnlich CH_4) zusammen mit gasförmigem H_2 aktiviert wird, wodurch sich freie Radikale wie H und CH bilden. Diese können an einer geeigneten Substratoberfläche adsorbiert werden (siehe Abb. 6.1). Wiederholte Anlagerung von C_xH_x -Gruppen unter sukzessiver Abtrennung der H-Atome führt zur Ausbildung einer Diamantschicht mit einer typischen Wachstumsrate von $\sim 10 \mu\text{m h}^{-1}$. Die Aktivierung der CH_4 -

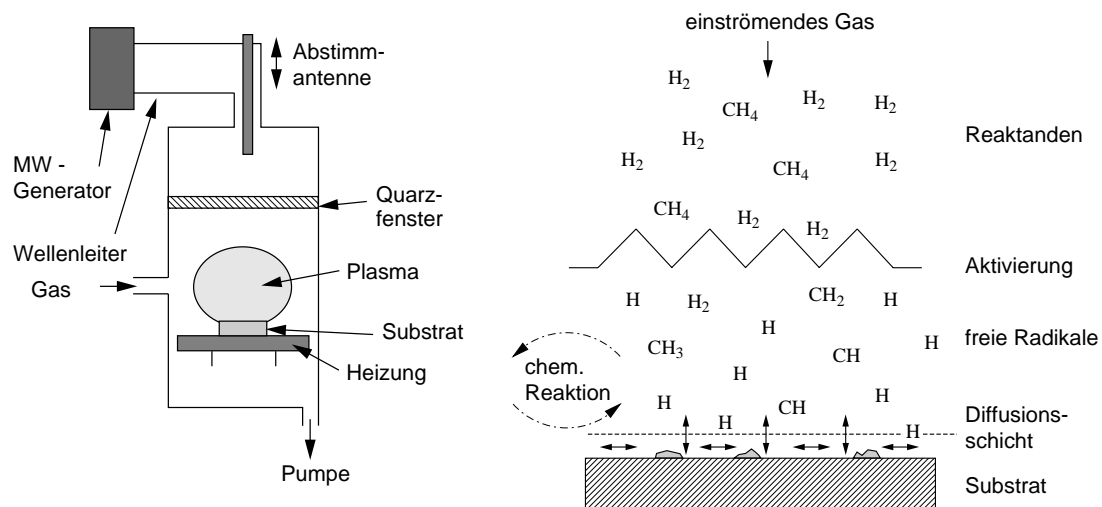


Abbildung 6.1: Herstellung von Diamant im CVD-Verfahren. Links ein üblicher MPCVD-Reaktor, rechts stark vereinfacht der chemische Prozess der Diamantabscheidung auf einem Substrat (aus [26]).

und H_2 -Moleküle kann in vielfältiger Weise erfolgen, wobei die Methode der mikrowelleninduzierten Gasentladung besonders weit verbreitet ist. Das Schema eines dafür benutzten Mikrowellen-Plasma-(MP)Reaktors ist in Abb. 6.1 links zu sehen. Grundsätzlich liefert das MP-Verfahren CVD-Filme vergleichsweise hoher Reinheit, was für die Verwendung in einer Einzelphotonenquelle von Bedeutung ist. Ferner erlaubt die Methode sehr verschiedenartige Zusammensetzungen der Ausgangsgase, sodass die gezielte Dotierung der Diamantschicht mit dem gewünschten Fremdatom möglich erscheint. Als problematisch erweist sich jedoch das Quarzfenster, das die Reaktionskammer nach außen abschirmt und vom aggressiven Plasma z. T. geätzt wird. Dies führt i. d. R. zu einer erheblichen, unkontrollierten Kontamination des Diamanten mit Silizium (Si).

²Üblich sind einige 10 Torr, wobei die Kristallqualität mit dem Druck zunimmt.

Stickstoff (N), eine weitere auch für CVD-Diamant typische Verunreinigung, wird dagegen über geringe N-Reste im CH_4/H_2 -Gasgemisch eingebracht. Fremdatome gelangen aber nicht nur aus der Gasphase über die Wachstumsseite in die Diamantschicht, sondern auch durch direkte Diffusion aus dem Substrat, auf dem der Diamantfilm wächst. Die Konzentration der Verunreinigung wird vom verwendeten Trägermaterial beeinflusst und nimmt mit zunehmender Schichtdicke rasch ab. Bei freistehenden CVD-Scheiben ausreichender Dicke können daher nach Abtrennung vom Träger die ersten mehreren $10\ \mu\text{m}$ bezüglich der Substratseite einfach durch Polieren mit Diamantstaub entfernt werden, um eine gleichbleibende Filmqualität über die gesamte Dicke zu erzielen. Die Güte des CVD-Diamanten wird nun nicht allein durch die Konzentration der darin enthaltenen Verunreinigungen bestimmt, sondern auch durch die Kristallstruktur an sich. Die i. a. unterschiedliche Gitterkonstante von Diamant und Substrat führt anfänglich aufgrund der damit verbundenen Spannungen zur Ausbildung kleiner Diamantkörner, die erst mit zunehmender Schichtdicke größer werden und unter günstigen Bedingungen langsam zusammenwachsen können. Man erhält also einen polykristallinen Film, bestehend aus Kristalliten und Korngrenzen (siehe Abb. 6.2). Der zugrundeliegende Prozess wird als *heteroepitaktisches* Wachstum

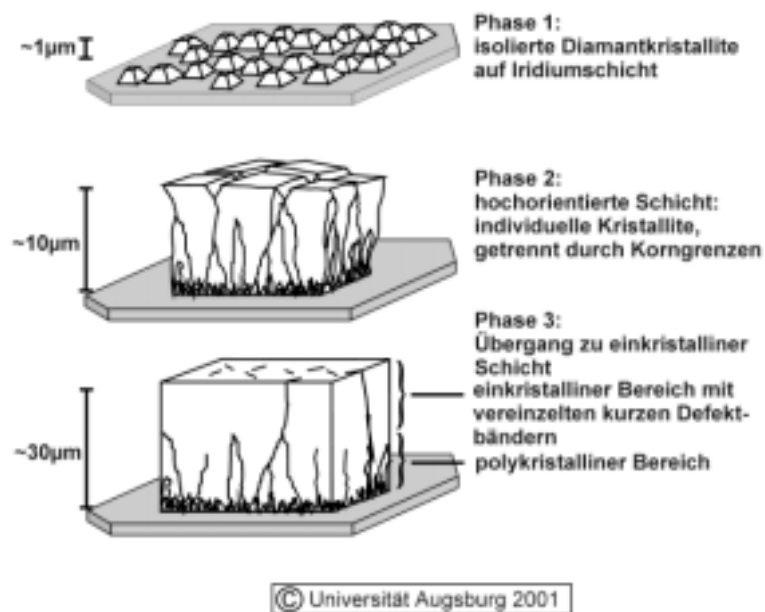


Abbildung 6.2: Heteroepitaktisches Diamantwachstum auf Iridium, der Übergang zum nahezu einkristallinen Diamant vollzieht sich mit zunehmender Schichtdicke. Abdruck mit freundlicher Genehmigung von M. Schreck, Univ. Augsburg.

bezeichnet. Wegen seiner großen industriellen Bedeutung zur Herstellung freistehender CVD-Fenster und zur Beschichtung von Schneidwerkzeugen sind die meisten erhältlichen CVD-Schichten von dieser Struktur. Fast nur zu Forschungszwecken, dafür aber in wesentlich besserer Qualität, werden *homoepitaktische* Filme gewachsen. Als Trägermaterial dient ein natürlicher oder synthetischer Diamantkristall. Da beim CVD-Wachstum jetzt im Prinzip nur das Atomgitter des Substratkristalls erweitert wird, bildet sich von Beginn an ein einkristalliner Film aus, der seitens des Trägers durch Diffusion auch praktisch nicht verunreinigt werden kann. Im übrigen variieren Zusammensetzung und Dichte der Verunreinigungen und der daraus entstehenden Punktdefekte stark mit den jeweiligen Wachstumsbedingungen, sodass a-priori-Aussagen problematisch sind. Die folgenden exemplarischen Untersuchungen zeigen jedoch Tendenzen hinsichtlich einiger CVD-spezifischer Eigenarten auf. Für die Messungen wurde durchwegs das in Teil I beschriebene konfokale Mikroskop zusammen mit dem Spektrometer und einem einfachen HBT-Aufbau eingesetzt, wie sie in [11, 10] beschrieben sind. Anstelle des RG 645 kommt das RG 630 zum Einsatz und das Interferenzfilter vor APD 2 wird durch den Kurzpass 750N ersetzt.

6.2 Erste optische Untersuchungen

Als Proben für die ersten Fluoreszenzuntersuchungen standen 3 heteroepitaktische CVD-Schichten zur Verfügung, die im Mikrowellen-Reaktor der Universität Augsburg hergestellt wurden. Die Filme sind auf spiegelnd polierten Si-Wafern aufgebracht, einem gängigen Substratmaterial für das CVD-Wachstum. Dies hängt vor allem mit dem ausreichend hohen Schmelzpunkt von 1683 K und dem geringen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zusammen, was verhindert, dass der Diamantfilm beim Abkühlen vom Substrat abplatzt. Im einzelnen sind die Proben anhand der Angaben des Herstellers und eigener lichtmikroskopischer Untersuchungen folgendermaßen zu charakterisieren:

- *Probe 1*: Dicke $\approx 8\text{-}10\ \mu\text{m}$; einzelne z. T. ineinander verschachtelte Kristallite, Epitaxie teilweise misslungen
- *Probe 2*: Dicke $\leq 0,5\ \mu\text{m}$; sehr kleine, teils großflächig zusammengewachsene, teils isolierte Kristallite
- *Probe 3*: Dicke $\approx 8\text{-}10\ \mu\text{m}$; quadratische Facetten von wenigen μm Kantenlänge, einheitliche Kristallachsenausrichtung senkrecht zur Si-Fläche, z. T. freischwebend (Si weggeätzt)

Schnell zeigte sich, dass die Fluoreszenzintensität dieser Proben nicht mit der einzelner NV-Defekte in den bisher betrachteten 1b-Kristallen zu vergleichen

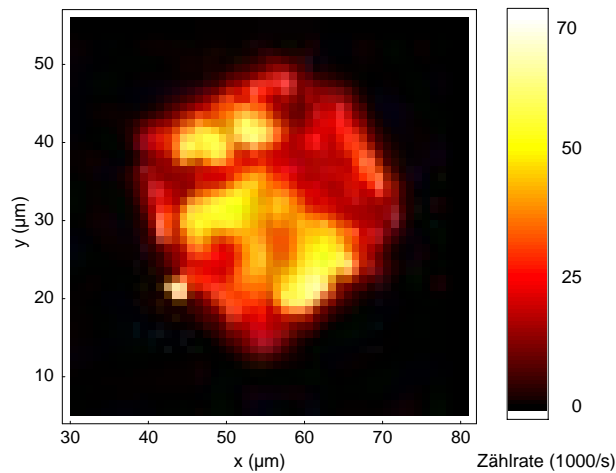


Abbildung 6.3: Fluoreszenz eines großen isolierten Einzelkristalls im Außenbereich von Probe 1, die Anregungsleistung beträgt ca. 10 mW.

ist. Beispielsweise erbrachten großflächige zweidimensionale Scans auf Probe 1 schon bei Anregungsleistungen unter $100 \mu\text{W}$ Zählraten von bis zu 50000 s^{-1} pro Detektor. Im Rahmen der dabei benutzten Rasterweite von $(2 \times 2) \mu\text{m}^2$ sind Hell-Dunkelstrukturen zu erkennen, die in etwa mit der aus lichtmikroskopischen Betrachtungen bekannten Korngröße von einigen μm übereinstimmen. Ob die Fluoreszenzmaxima eher in den Kristalliten oder aber an den Korngrenzen auftreten, konnte nicht sicher ermittelt werden. Der Fluoreszenzkontrast von etwa 4:1 in Verbindung mit der minimalen Zählrate von 10000 s^{-1} legt jedoch den Schluss nahe, dass die Intensität im CVD-beschichteten Bereich nirgends annähernd Raman-Niveau erreicht. In den Randzonen von Probe 1 treten allerdings auch vereinzelte, isolierte Kristalle von bis zu $20 \mu\text{m}$ Kantenlänge auf (siehe Abb. 6.3). Die Tatsache, dass die Form eines solchen Kristalls im Fluoreszenzmikroskop überhaupt zu Tage tritt, deutet auf eine verhältnismäßig hohe Dichte an optisch aktiven Defekten hin. Ob diese den Kristall vollständig durchsetzen oder sich auf dessen Oberflächen beschränken, lässt sich der Grafik nicht entnehmen. Die Ergebnisse verschiedener axialer Intensitätsmessungen („z-Scan“) deuten jedoch auf die erste Möglichkeit hin. Dagegen findet man neben dem Kristall erwartungsgemäß eine fast verschwindende Intensität. Die daraus folgende hohe Sensitivität sollte bei genügend geringer Flächendichte noch den, nur durch das Detektorrauschen begrenzten, Nachweis sehr leuchtschwacher Kristallite ermöglichen, die also im Idealfall nur ein Lumineszenzzentrum enthalten. Da die mittlere Defektanzahl in einem Korn der Ausdehnung d wie d^3 abnimmt (siehe dazu Abschn. 7.3), erscheint es plausibel, zu möglichst klei-

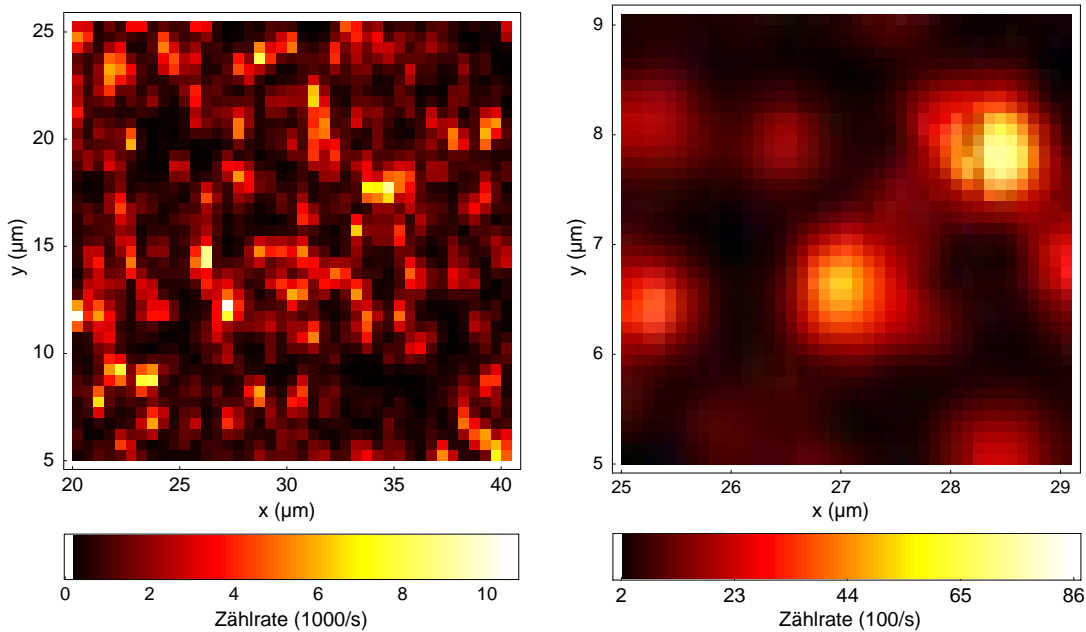


Abbildung 6.4: Fluoreszenz einzelner Mikrokristalle aus Probe 2, die Körner weisen eine Größe von $\leq 0,5 \mu\text{m}$ auf, wie am Ausschnitt (rechts) zu erkennen ist.

nen Körnchen überzugehen. Abb. 6.4 zeigt links eine $(20 \mu\text{m})^2$ große Fläche auf Probe 2. Der Kontrast beträgt maximal 56:1 bei schwachem Untergrund. Die Flächendichte im betrachteten Bereich ist gering genug, um einzelne isolierte Kristalle detektieren zu können, wie der Ausschnitt in Abb. 6.4 rechts demonstriert. Zu erkennen sind hellere und leuchtschwächere Zonen, deren Ausdehnung in etwa dem räumlichen Auflösungsvermögen von $0,5 \mu\text{m}$ entspricht. Dies steht im Einklang mit der oben angegebenen Korngröße dieser Probe. Aus der Häufigkeit und großen Helligkeit der lumineszierenden Körner sowie der Tatsache, dass zahlreiche HBT-Messungen auch auf den relativ lichtschwachen Körnchen keine Anzeichen eines Einbruchs zeigten, ist auch hier auf eine sehr hohe Defektdichte zu schließen, die von der Mikroskopoptik nicht mehr aufgelöst werden kann. Mehrere auf derartigen Körnchen aufgenommene Spektren zeigen denn auch diverse Lumineszenzlinien auf einem breitbandigen Untergrund (Abb. 6.5). Die Linie nahe 700 nm wird in [27] einem bestimmten Stickstoffaggregat zugeschrieben, während die Emission bei 738 nm auf Silizium zurückzuführen ist. Letztere war nach den Ausführungen in [28] erwartet worden und wird Thema des nächsten Kapitels sein. Der breitbandige Untergrund dürfte sich am kurzwelligen Ende in den grünen und evtl. blauen Spektralbereich fortsetzen und wird dort wahr-

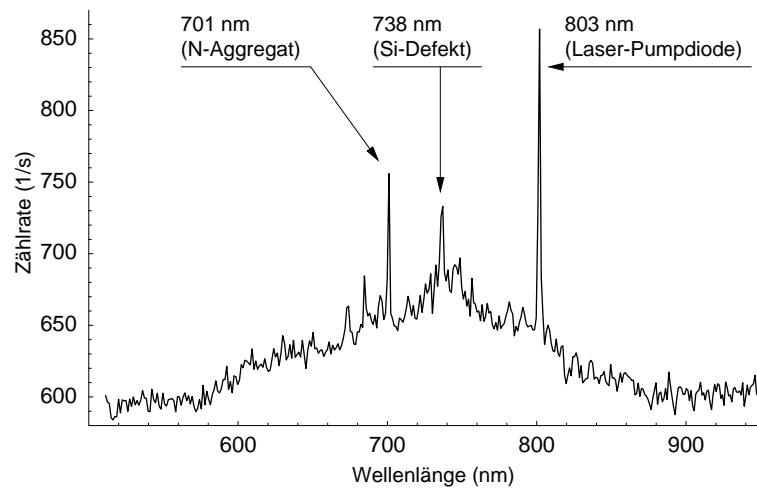


Abbildung 6.5: Spektrum eines isolierten Kristallits auf Probe 2, die Anregungsintensität beträgt ca. 0,2 mW.

scheinlich nur durch das Farbfilter OG 590 im Mikroskop unterdrückt. Rätsel gab zunächst die wiederholt und auch in bestimmten anderen Proben beobachtete scharfe Linie bei 803 nm auf. Um deren Herkunft zu klären, wurde auf und neben einem Mikrokristall in Probe 2 jeweils ein Spektrum aufgenommen (Abb. 6.6). Dass die Linie ohne Phononenverbreiterung o. ä. auch auf dem blanken

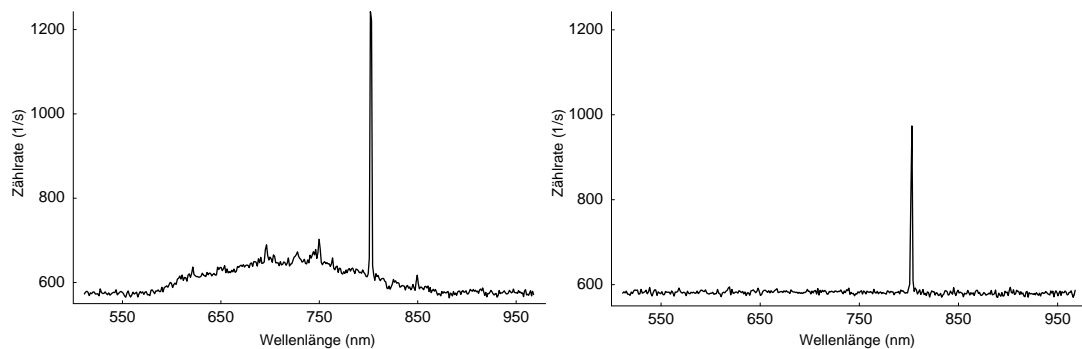


Abbildung 6.6: Spektren auf (links) und neben (rechts) einem isolierten Kristallit auf Probe 2.

Si-Träger auftritt, weist auf eine Reflexion auftreffender Strahlung hin. In der Tat stellte sich als Ursache die Pumpdiode des Nd : YVO₄-Lasers heraus, deren Strahlung jedenfalls bei geringer Leistung vom YVO₄-Kristall unvollständig absorbiert wird. Abb. 6.7 zeigt die beiden „Moden“ des Lasers, wie sie durch

direkte Aufnahme, also ohne den Umweg über das Mikroskop, zu messen sind. Zum Schluss dieses kleinen Exkurses soll noch der Verlauf der 803nm-Intensität

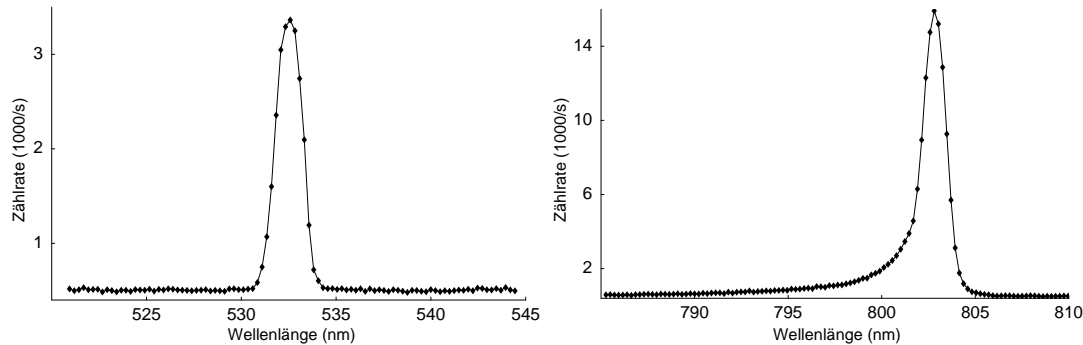


Abbildung 6.7: Emissionslinien des Nd : YVO₄-Lasers. Links die Standardlinie bei 532 nm, rechts die schwache Reststrahlung der Pumpdiode bei ca. 803 nm (Die Intensitäten sind *nicht* vergleichbar!).

mit der Laserausgangsleistung ermittelt werden. Um trotz der relativ hohen Zählraten richtige Ergebnisse zu erhalten, ist dazu erst das Sättigungsverhalten der Spektrometer-APD zu überprüfen und die Zählrate r_{803} anschließend auf die Nichtlinearität im oberen Intensitätsbereich zu korrigieren (siehe Abb. 6.8). Wie der Einsatz in der rechten Grafik zeigt, setzt die Emission der 803nm-Strahlung bereits unterhalb der Laserschwelle ein, ein klarer Hinweis auf die Herkunft der Linie. In der Folge wurde das Problem einfach durch Einbau eines Farbfilters BG 39 direkt an der Laserschwelle beseitigt.

Wenden wir uns nun wieder den CVD-Schichten zu und betrachten jetzt Probe 3. Aus materialwissenschaftlicher Sicht weist dieses Exemplar aufgrund der halbwegs einheitlichen Orientierung der Kristallachsen die beste Qualität auf. Hingegen zeigt sich im konfokalen Mikroskop hinsichtlich der allgemeinen Fluoreszenzintensität kein wesentlicher Unterschied zu den beiden anderen Proben. Der Hell-Dunkel-Kontrast bewegt sich wegen der flächendeckenden CVD-Beschichtung wieder meist im Bereich um 4:1, selten mehr. Um eine eventuell unterschiedliche Abhängigkeit der Lumineszenz heller und leuchtschwacher Zonen von der Anregungsintensität zu untersuchen, wird auf zwei entsprechenden, ca. $5 \mu\text{m}$ entfernten Stellen die Fluoreszenzzählrate als Funktion der Laserleistung gemessen. Anzeichen einer Sättigung sind allerdings nur an der „dunklen“ Stelle zu erkennen, wobei selbst hier schon bei einer Anregungsleistung von 1 mW eine Zählrate von $1,5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ pro Detektor zu verzeichnen ist. Mittels Streu-

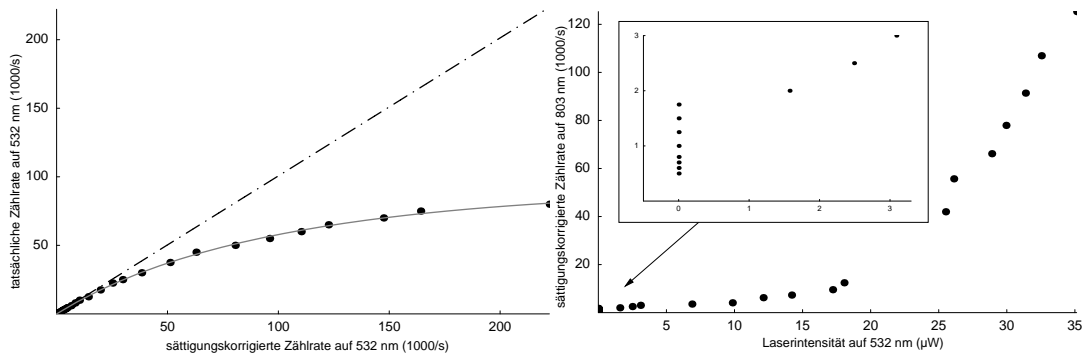


Abbildung 6.8: Bestimmung der Abhängigkeit der 803nm-Intensität von der Laserleistung bei 532 nm. Links das Sättigungsverhalten des Spektrometerdetektors (die Laserleistung ist auf die Zählrate umgerechnet), rechts die Emission auf 803 nm. Die Strahlung setzt bereits unter der Laserschwelle ein.

lichtmessungen³ wurde ferner versucht, die Fluoreszenzmaxima und Minima den Facetten oder aber den dazwischenliegenden Korngrenzen zuzuordnen. Obwohl dabei die Facetten schemenhaft anhand ihrer höheren Reflektivität zu erkennen sind, kann eine eindeutige Korrelation zur Fluoreszenzverteilung auf der gleichen Fläche nicht festgestellt werden. Klare Aussagen sind dagegen im Bezug auf die spektrale Verteilung der Emission möglich. Insbesondere ist die Frage von Interesse, ob die bereits öfters beobachtete Linie bei 738 nm überall oder nur punktuell auftritt. Die in Abb. 6.9 links dargestellte Fläche wurde mit dieser Zielsetzung spektral abgerastert, sodass für jedes der ca. 1600 Pixel ein Spektrum resultiert. Die Auswertung ergibt – allerdings nur mit einer Auflösung von $(1 \mu\text{m})^2$ – eine fast flächendeckende Emission bei 738 nm. Abb. 6.9 zeigt rechts eines dieser Spektren im Vergleich zu dem auf einer benachbarten Stelle relativ geringer Lumineszenzintensität, an der die fragliche Linie nur schwach hervortritt. Die bisher gewonnenen Ergebnisse machen deutlich, dass die Silizium-Linie bei 738 nm zwar zuverlässig und relativ markant, jedoch in zu hoher Dichte und zusammen mit einem beträchtlichen spektralen Untergrund auftritt. Die Aufgabe besteht deshalb darin, die Defektdichte zu reduzieren. Da für die Kontamination mit Si gemäß den Ausführungen in Abschnitt 6.1 u.a. das Substrat verantwortlich ist, erscheint es plausibel, zu anderen Trägermaterialien überzugehen. Sogenannte Memory-Effekte im Reaktor sollten eine geringe Dotierung mit Si dennoch gewährleisten. Basierend auf diesen Überlegungen werden die Untersuchungen an zwei weiteren Filmen fortgesetzt, die a priori folgenderma-

³In erster Näherung genügt es dazu, die Rotfilter OG 590 und RG 630 durch ein geeignetes Graufilter zu ersetzen.

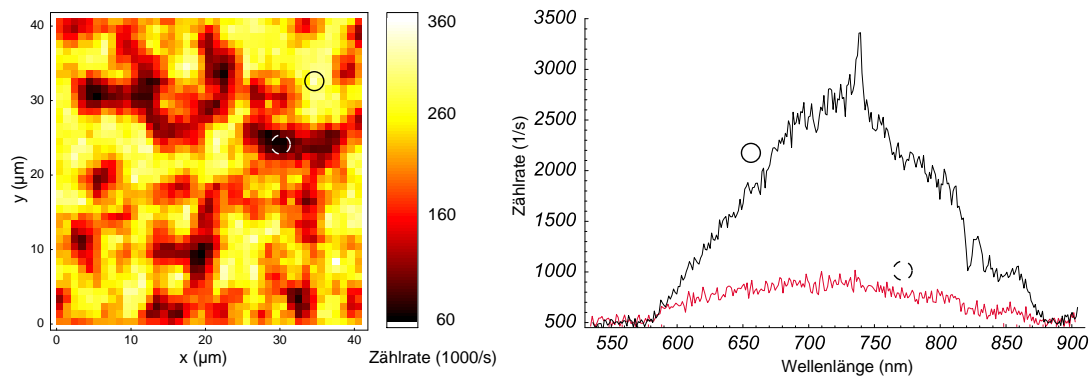


Abbildung 6.9: Fluoreszenzverteilung in Probe 3. Links die räumlichen Schwankungen der Gesamtintensität, rechts exemplarische Spektren auf einer hellen bzw. dunklen Stelle.

ßen zu charakterisieren sind [29]:

- *Probe 1'*: Dicke $> 20 \mu\text{m}$; auf Titan abgeschieden, grobe Kristallite, graues, opakes Erscheinungsbild
- *Probe 2'*: Dicke $\leq 1 \mu\text{m}$, auf Rhenium abgeschieden, feine Kristallite, farbloses bis rötliches, transparentes Erscheinungsbild

Beide Proben sind vom Substrat abgeplatzt (vgl. Abschnitt 6.1) und müssen in einer speziellen Halterung (z. B. durchbohrte Rasierklingen) fixiert werden. Da auch bei diesen Präparaten die Gesamtintensität der Fluoreszenz die Suche nach einzeln detektierbaren Zentren nicht sinnvoll erscheinen ließ, wurde das Augenmerk hauptsächlich auf die spektralen Eigenschaften gelegt. Wendet man sich zunächst Probe 1' zu, so weisen alle der unter gleichen Bedingungen aufgenommenen Spektren eine ähnliche Gesamtstruktur auf. Die Emission erreicht ihr Maximum stets bei ca. 700 nm und wird an den spektralen Enden zum Teil scheinbar durch das OG 590 bzw. die Detektor-Quanteneffizienz verringert. Der Ramanpeak 2. Ordnung verschwindet wegen der geringen Laserintensität im Fluoreszenzspektrum. Linien verschiedener Lumineszenzzentren treten verbreitet, wenn auch relativ schwach hervor. Abb. 6.10 stellt exemplarisch zwei derartige Spektren dar. Besonders häufig ist die nach [27] von Ni verursachte Linie bei 658 nm zu erkennen. Diese Verunreinigung dürfte aus den Reaktorwänden selbst stammen und kann daher nicht ohne weiteres reduziert werden. Ferner tritt die bekannte Null-Phononen-Linie des NV-Zentrums bei 638 nm des öfteren auf. Hingegen ist, verglichen mit den Proben 1 bis 3, eine deutliche Abnahme der Si-Linie bei 738 nm zu verzeichnen. Genauerem Aufschluss über die tatsächliche

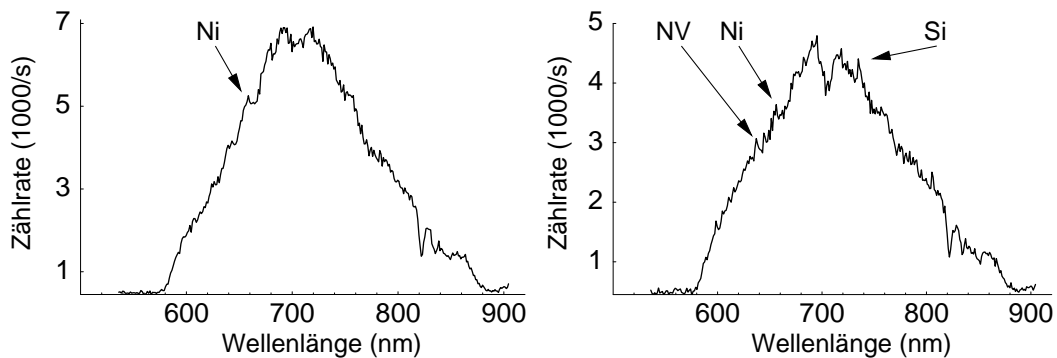


Abbildung 6.10: Spektren auf Probe 1'. Die charakteristischen Linien des NV-Zentrums bei 638 nm, von Nickel (Ni) bei 658 nm und Silizium (Si) bei 738 nm zeichnen sich über einem massiven breitbandigen Untergrund ab.

räumliche Verteilung der Si-Emission gibt wie schon bei Probe 3 eine „Landkarte“ von Spektren auf einem $(10 \mu\text{m})^2$ großen Feld mit Rasterweite $(0,5 \mu\text{m})^2$. Die räumliche Intensitätsverteilung der 738nm-Linie ergibt sich daraus in halbquantitativer Auswertung wie in Abb. 7.8 dargestellt. Demnach kann die Linie nun nicht mehr flächendeckend nachgewiesen werden. Wenngleich auch die Emission nach Abb. 7.8 noch nicht wie gewünscht punktuell, sondern clusterartig auftritt, sollte es demnach prinzipiell auf diesem Weg möglich sein, die Konzentration von Si auf das gewünschte niedrige Maß zu senken, um einzelne Defekte anregen zu können. Dem steht jedoch noch die weitaus schwerer zu kontrollierende breitbandige Hintergrundstrahlung entgegen, ein Faktum, das auch die andere Probe (2') dieser Messreihe kennzeichnet. Obwohl aufgrund der geringeren Dicke und sehr guten Transparenz des Films eine deutlich schwächere Lumineszenz zu erwarten wäre, liegt die Gesamtintensität nicht weit unter der von Probe 1'. Allerdings ist die Emission nun mehr ins Rote verschoben und erreicht ihr Maximum erst bei ca. 750 nm. Hinsichtlich der Defekte und ihrer Verteilung zeigen sich keine signifikanten Unterschiede zur vorher untersuchten Probe. Abb. 6.12 zeigt zwei exemplarische Spektren. Auch hier tritt die Si-Linie nur mehr schwach und lückenhaft auf. Dagegen finden sich stellenweise markante Linien bei etwa 726 nm und 694 nm. Erstere ist zwar in [27] erwähnt, aber nicht näher spezifiziert, während für letztere erst kürzlich Fe als wahrscheinliche Ursache angegeben wurde (Kap. 8). Interessanterweise scheint die 694nm-Emission nach dem Ausheizen der Probe (60 min bei 800°C) verstärkt aufzutreten (rechtes Spektrum in Abb. 6.12). Die Prozedur wurde ursprünglich in der Absicht durchgeführt, einige Defekte thermisch zu deaktivieren. Diesbezügliche Erfolge waren allerdings nicht zu verzeichnen: In Probe 2' gab es im Gegenteil vage Anzeichen

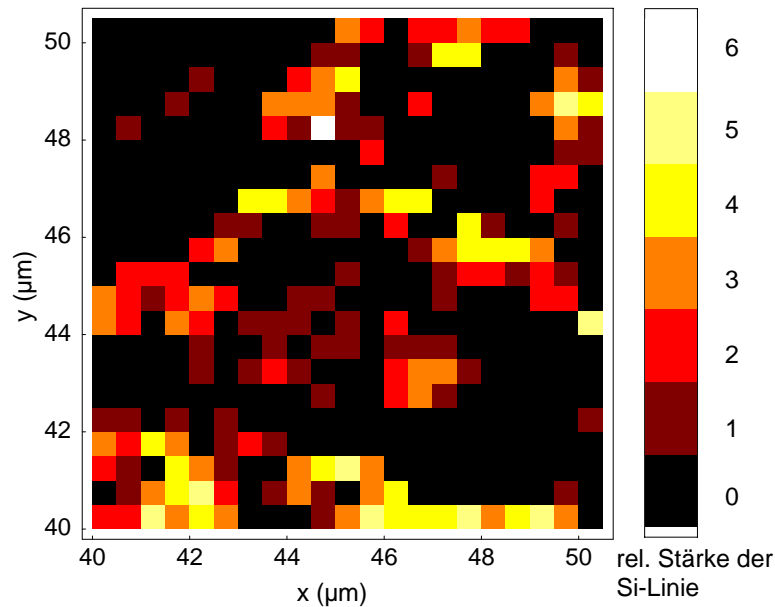


Abbildung 6.11: Intensitätsverteilung der Si-Linie bei 738 nm in Probe 1', wie sie anhand der spektralen „Landkarte“ einer $(10 \mu\text{m})^2$ großen Fläche ermittelt werden kann.

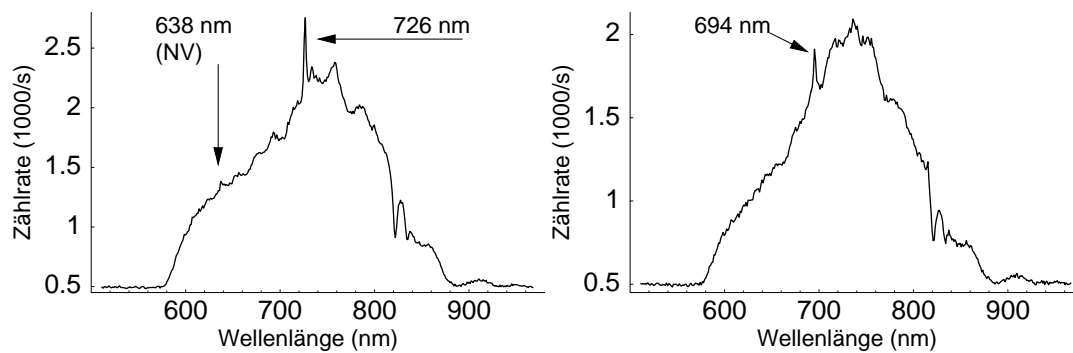


Abbildung 6.12: Spektren auf Probe 2'. Die Si-Linie lässt sich nicht mehr überall nachweisen, dagegen sind mitunter markante Linien bei 726 nm und 694 nm zu erkennen.

einer Zunahme der Si-Linie. Probe 1' blieb dagegen von der Wärmebehandlung weitgehend unbeeinflusst.

Als Fazit bleibt somit festzuhalten, dass die Reduzierung der breitbandigen, durch verschiedenartige Verunreinigungen verursachten Untergrundfluoreszenz bei gleichzeitig geeignet geringer Si-Dichte vorrangiges Ziel der weiteren Arbeiten sein muß.

Kapitel 7

Das SiV - Zentrum

In den Kapiteln 5 und 6 wurde deutlich, dass an eine praxistaugliche Einzelphotonenquelle für die Quantenkommunikation gewisse Anforderungen sowohl bezüglich des verwendeten Punktdefekts selbst als auch hinsichtlich des Trägermaterials zu stellen sind. Während für die Herstellung des letzteren die CVD-Technologie zunächst die Methode der Wahl ist, lässt sich die Frage nach einem geeigneten Fluoreszenz-Zentrum nicht von vornherein beantworten und muß unter Berücksichtigung eigener Messungen entschieden werden. Es erweist sich nun als glücklicher Umstand, dass die in den bisher untersuchten Proben (vgl. Abschn. 6.2) nachgewiesene Si-Linie bei 738 nm als für CVD-Diamant typische Verunreinigung¹ relativ gut erforscht ist. Wie ein Blick in die Literatur [30]-[40] zeigt, weist der aus Si-Atom(en) und Fehlstelle(n) bestehende und deshalb als SiV-Zentrum bezeichnete Defekt einige interessante Merkmale auf, die eine weitere Untersuchung lohnend erscheinen lassen. Der erste Abschnitt stellt daher die wichtigsten physikalischen Eigenschaften des Zentrums zusammen. Im zweiten Abschnitt werden eigene Untersuchungen an optischen CVD-Fenstern vorgestellt, in denen Si die dominante Verunreinigung darstellt. Abschließend stehen mögliche Vorgehensweisen zur Erzeugung einzeln detektierbarer SiV-Zentren zur Diskussion, mit deren Umsetzung in dieser Diplomarbeit z.T. begonnen wurde.

7.1 Struktur und optische Eigenschaften

Wegen seines verglichen mit dem C-Atom eher großen Atomradius von 117 pm wird Si mit viel geringerer Wahrscheinlichkeit als N oder B in das Diamantgitter eingebaut. In der Tat wurden die ersten, anhand von Implantationsversuchen [30] gewonnenen Hinweise auf Si als Lumineszenzverursacher mehreren kritischen

¹wegen der Quarzfenster in einigen Reaktoren und des oft benutzten Si-Substrats

Überprüfungen unterzogen [31, 32], die u. a. Verwechslungen mit der neutralen Fehlstelle (V) ausschließen sollten, deren Null-Phononen-Linie (ZPL) bei 740 nm liegt. Endgültige Klarheit schaffte erst die Arbeit von Clark et. al [33], wonach bestimmte Aufspaltungen der 738nm-Linie den 3 natürlich vorkommenden Si-Isotopen zugeschrieben werden können. Zudem ergaben die Messungen eine signifikante Zunahme der Lumineszenz nach e^- -Bestrahlung und Ausheizen der Probe bis 800°C. Da die neutrale Fehlstelle V bei dieser Temperatur im Diamant zu wandern beginnt, wird dies allgemein wie beim NV-Defekt als klares Indiz für die Beteiligung einer oder mehrerer Fehlstelle(n) am SiV-Zentrum gewertet. Über die genaue räumliche Struktur herrscht auch heute noch keine völlige Klarheit. Als gesichert gilt aufgrund polarisierter Lumineszenzmessungen nur die $\langle 110 \rangle$ -Symmetrie des Defekts, dessen Übergangsdipolmoment ebenfalls längs dieser Achse ausgerichtet ist [34]. Für die Lumineszenz eines einzelnen SiV-Zentrums ist demnach ebenfalls eine natürliche Polarisation zu erwarten. Aufgrund von Simulationsrechnungen [35] wird als atomares Modell eine einfach negativ geladene Konfiguration vermutet, in der das Si-Atom zwischen zwei Fehlstellen eingebettet ist (Abb. 7.1). Der experimentelle Nachweis steht allerdings noch aus. Auf jeden Fall müsste sich aus der theoretischen Vorhersage

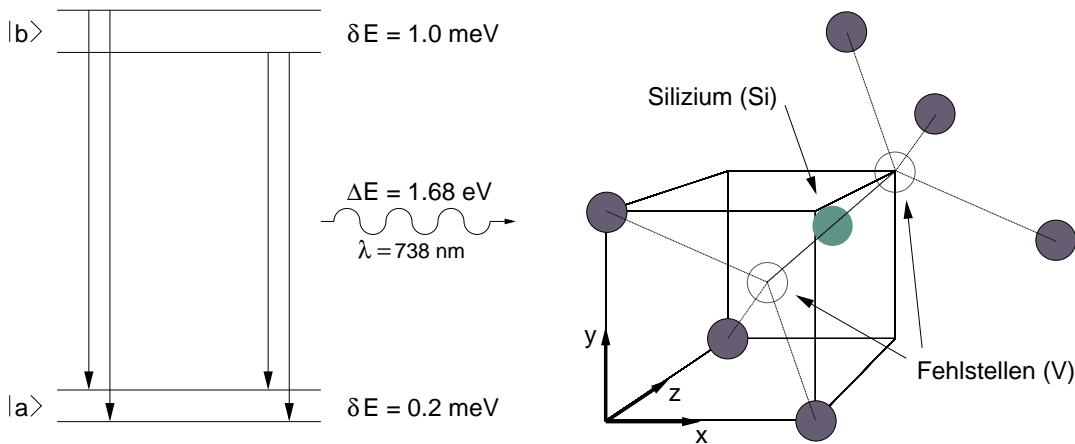


Abbildung 7.1: Struktur des SiV-Zentrums in Diamant, links die Aufspaltung von Grund- und Anregungszustand mit den 4 möglichen Übergängen, rechts die theoretisch vorhergesagte räumliche Struktur, die umgebenden C-Atome sind dunkel gezeichnet.

eine außerordentliche (thermische) Stabilität ergeben, um mit früheren Messungen im Einklang zu stehen: Ruan et al. [36] konnten selbst bei Ausheizversuchen bis 1350°C kein Ausbleichen der 738nm-Linie feststellen. Von Interesse ist für unsere Zwecke ferner die elektronische Struktur und das davon wesentlich be-

stimmte Spektrum. Die diesbezüglichen Messungen [33] zeigen für jedes der 3 Si-Isotope eine Feinstrukturaufspaltung der ZPL in 4 homogene Linien. Demnach besitzen Grund- und Anregungszustand $|g\rangle$ und $|e\rangle$ Dublettstruktur, wie in Abb. 7.1 dargestellt. Wegen der Kleinheit der Aufspaltung thermalisieren $|g\rangle$ und $|e\rangle$ allerdings bei 300 K. Weiteren Aufschluss über die energetischen Zustände geben Lumineszenzmessungen bei tiefen Temperaturen [32]. Anders als beim NV-Zentrum zeigt sich hier keine Abnahme der Lumineszenzintensität $I(T)$ bis etwa 10 K, sondern vielmehr ein deutlicher Anstieg aufgrund einfrierender nichtstrahlender Prozesse. Laut [32] folgt der Verlauf von $I(T)$ dem Modell

$$\eta = \frac{P_r}{P_r + P_{nr}} \quad \text{mit} \quad P_{nr} \propto e^{-E/kT} \quad (7.1)$$

für die Quanteneffizienz η und die Wahrscheinlichkeit P_r für einen strahlenden Zerfall. Ein nichtstrahlender Übergang wird hier durch P_{nr} mit einer Aktivierungsenergie E berücksichtigt. Die gemessene Quanteneffizienz für den in [32] untersuchten polykristallinen CVD-Film betrug bei 300 K ca. 15% und für $T \rightarrow 0$ gemäß (7.1) 100%. Stimmen die Ergebnisse in [37], so ist u. U. aber doch mit einem Seitenzustand zu rechnen, der sich erst unterhalb von etwa 20 K bemerkbar macht. Nähere Informationen liegen dazu derzeit nicht vor. In der gleichen Arbeit [32] stellen Feng und Schwartz weiterhin einen linearen Zusammenhang zwischen Lumineszenzintensität L und Anregungsintensität I fest,

$$I \propto L^{1.0} \quad (7.2)$$

und schließen daraus auf einen Einzelphotonenübergang. Die beschriebene Zunahme der Fluoreszenzquantenausbeute mit sinkender Temperatur steht qualitativ im Einklang mit Lebensdauer-Messungen des angeregten Zustands [38]. Demnach beträgt die Zerfallszeit je nach Fimqualität bei 300 K 1 ns bis 2,7 ns und steigt beim Übergang zu 5 K auf bis zu 4 ns an. Unterstützung finden diese Resultate durch die Berechnungen in [35], die eine strahlende Zerfallszeit (mit $\lim_{T \rightarrow 0} \tau = \tau^{rad}$) von 2-3 ns liefern. Man sollte jedoch berücksichtigen, dass die kurzen Zerfallszeiten u. U. auch bei $T \rightarrow 0$ durch strahlungslose Prozesse zustande kommen könnten, die durch Verunreinigungen wie z. B. amorphen oder graphitene Kohlenstoff begünstigt werden [39]. Ob die Lebensdauer eines einzelnen SiV-Zentrums in einer sonst perfekt kristallinen Umgebung so gering bleibt, kann daher noch nicht sicher entschieden werden. Wendet man sich schließlich dem Spektrum als Ganzem zu, so wird übereinstimmend von der dominanten ZPL gegenüber einer äußerst schwachen vibronischen Verbreiterung berichtet [32, 40, 41]. Die Halbwertsbreite der ZPL, gegeben durch die Feinstrukturaufspaltung, beträgt bei 10 K etwa 1,5 meV, also weniger als 1 nm [33]. Das vibronische Seitenband setzt sich sowohl aus gittergekoppelten Phononenanteilen als auch lokalen Moden zusammen [32, 38, 40]. Letzteres unterstützt die

Vermutung in [35], wonach das Si-Atom einen Zwischengitterplatz einnehmen sollte, obwohl der Schluss nicht zwingend ist.

Als Fazit dieses Abschnitts lässt sich somit festhalten, dass das SiV-Zentrum die Kriterien in Abschnitt 5.2 nach heutigem Kenntnisstand zumindest besser als das NV-Zentrum erfüllen dürfte und weitere Untersuchungen lohnt.

7.2 Untersuchung optischer CVD-Fenster

Bei den in Abschnitt 6.2 analysierten Diamantfilmen bestand das Problem in dem sehr intensiven unstrukturierten Fluoreszenzhintergrund, der auf vielfältige Verunreinigungen zurückzuführen ist. Gegenstand der im folgenden dokumentierten Messreihe sind freistehende CVD-Fenster optischer Qualität. Solche Fenster werden seit einigen Jahren wegen ihrer IR-Durchlässigkeit u. a. in CO₂-Lasern eingesetzt. Die untersuchten Fenster stammen vom Fraunhofer-Institut für Angewandte Festkörperphysik und weisen nach Herstellerangaben mit die beste derzeit erreichbare CVD-Qualität auf. Die Transmission der 250 μm dicken und 5 mm großen Scheiben erreicht im sichtbaren Spektralbereich nahezu die Werte hochreiner natürlicher 2a-Diamanten. Die Proben erscheinen dementsprechend farblos mit einem leichten Grauschleier. Als freistehende Fenster bestehen sie notwendigerweise aus polykristallem Material. Betrachtet wird lediglich eines der beiden äußerlich nicht unterscheidbaren Fenster. Eine Ansicht unter dem Lichtmikroskop bei 1000-facher Vergrößerung (siehe Fotos im Anhang) kann keinen Aufschluss über eine polierte Wachstums- bzw. eine naturbelassene Substratseite liefern. Die Oberfläche erscheint als vollkommen glatt, abgesehen von winzigen, gleichmäßig verteilten Körnchen, die von der Mikroskop-Optik nicht mehr aufgelöst werden können und daher allenfalls wenige 100 nm groß sein dürften. Die Begriffe „Vorderseite“ und „Rückseite“ beziehen sich daher im folgenden auf die z -Position des Laserfokus. Um einen ersten Überblick über die räumliche Verteilung der Fluoreszenz zu gewinnen, wird zunächst rechnergesteuert ein dreidimensionales Raster des gesamten spektral nicht gefilterten Fluoreszenzlichts erstellt. Dazu werden insgesamt 120 transversale Intensitätsverteilungen (vgl. bisherige Abbildungen) der Größe $(80\mu\text{m})^2$ bei zunehmender Tiefe z durchgeführt. Die optischen Schrittweiten betragen in (x,y) -Richtung jeweils 2 μm und in z -Richtung 2,4 μm (mechanisch 1 μm). Der CVD-Diamant ist demnach von einem dreidimensionalen Netzwerk sehr stark lumineszierender Linien vor einem relativ dunklen Hintergrund durchzogen. Im übrigen kann eine Zunahme der Netzliniendichte mit wachsender Tiefe z beobachtet werden. Demnach sollte die oben als „Rückseite“ bezeichnete Fläche die Substratseite mit kleinen Kristalliten darstellen und die „Vorderseite“ als Wachstumsseite zu interpretieren sein. Die Linien können nach [42] mit den Korngrenzen des polykristallinen Materials

identifiziert werden und kommen im weiteren Verlauf dieser Zusammenstellung noch eingehender zur Sprache. Eine weitere Charakterisierung der makrosko-

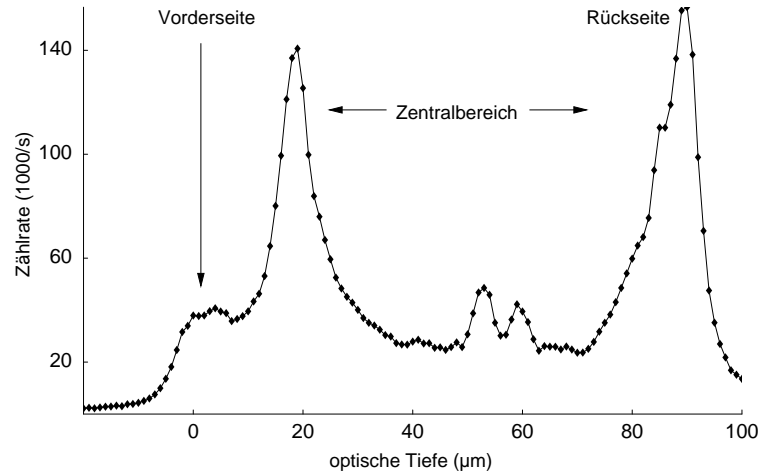


Abbildung 7.2: axiale Verteilung der Fluoreszenzintensität im CVD-Fenster, gemessen am Ort $(x/y)=(40/40)$ in den Abb. 7.3.

pischen Struktur des Diamanten ergibt sich aus der axialen Fluoreszenzverteilung. Abb. 7.2 stellt die Intensität in Abhängigkeit von der mechanischen Tiefe z an einem festen Ort (x,y) dar. Aufgrund des Brechungsindex von 2,4 erscheint die CVD-Schicht bei einer solchen Messung dünner, als es der Wirklichkeit entspricht. Obwohl die Maxima auf bzw. dicht unterhalb der Vorder- bzw. Rückseite bei vielen ähnlichen Messungen auftreten, sollte betont werden, dass es sich hier um reines Fluoreszenzlicht und nicht etwa um Reflexionen des Anregungslasers handelt. Dessen Strahlung wird praktisch zu 100% herausgefiltert. Wie die Auswertung der 3D-Fluoreszenzverteilung weiter zeigt, bestehen signifikante strukturelle (und spektrale) Unterschiede zwischen Wachstums- und Substratseite. Abb. 7.3 zeigt links einen Ausschnitt dieser 3D-Messung, aufgenommen auf oder dicht unter der Wachstumsseite des Diamanten. Wie auch im vollständigen 3D-Abbild zu sehen ist, treten in dieser Zone hinsichtlich der Lumineszenzintensität plattenartige Strukturen auf, die möglicherweise mit transversalen Korngrenzen in Verbindung gebracht werden können. Grundsätzlich erscheint die Linie bei 738 nm auf dieser Vorderseite besonders dominant, jedenfalls weisen die aufgenommenen Spektren im Vergleich zu Messungen im Zentralbereich einen vergleichsweise geringen breitbandigen Anteil außerhalb von 738 nm auf. Dargestellt ist exemplarisch ein Spektrum an der gekennzeichneten Stelle (a). Messungen an anderen Stellen liefern ähnliche Resultate. Im rechten Bild ist die rückwärtige Oberfläche (Substratseite) des CVD-Fensters dargestellt. Diese ist, verglichen

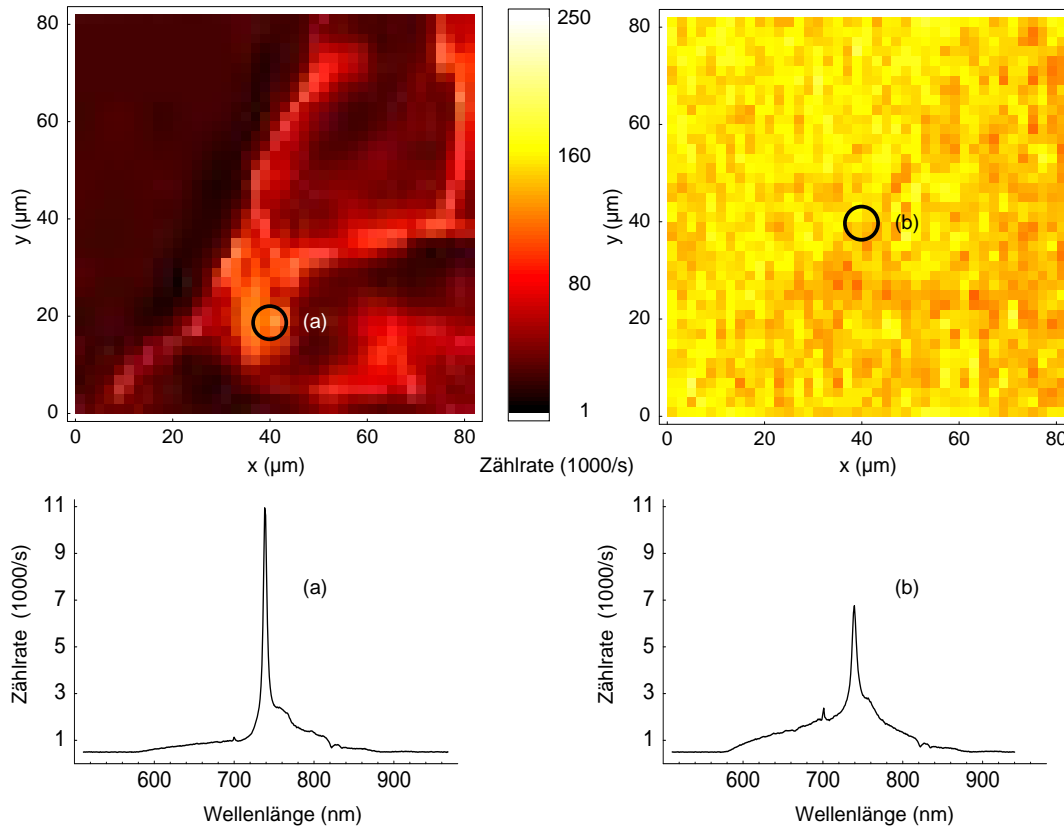


Abbildung 7.3: Strukturelle und spektrale Unterschiede zwischen Vorderseite (links) und Rückseite (rechts). Die Kreise bezeichnen die Aufnahmestellen der Spektren.

mit der Wachstumsseite, weit weniger strukturiert und weist im Gegensatz zum Zentralbereich eine relativ gleichmäßige hohe Fluoreszenzintensität auf. Das auf einer willkürlich ausgewählten Stelle (b) aufgenommene Spektrum besitzt einen breitbandigen Untergrund unter der Si-Linie. Ferner kann wie schon in Spektrum (a) die Linie bei 700 nm festgestellt werden, die nach [43] mit N-Aggregaten in Verbindung gebracht wird. Die Anregungsleistung beträgt bei allen in Abb. 7.3 dargestellten wie auch bei der zuvor präsentierten Messung in z-Richtung ca. 0,14 mW. Über die Ursache für das unerwartet deutliche Hervortreten der SiV-Linie nahe der Wachstumsoberfläche kann nur spekuliert werden. Möglicherweise handelt es sich um eine Folge der von der Substrat- zur Wachstumsseite hin zunehmenden Kristallqualität, die eine Verstärkung der 738nm-Emission bewirkt [?]. Aus dem Oberflächenbereich stammt denn auch das Spektrum in Abb. 7.4, das verglichen mit der SiV-Emission einen sehr geringen Untergrund aufweist.

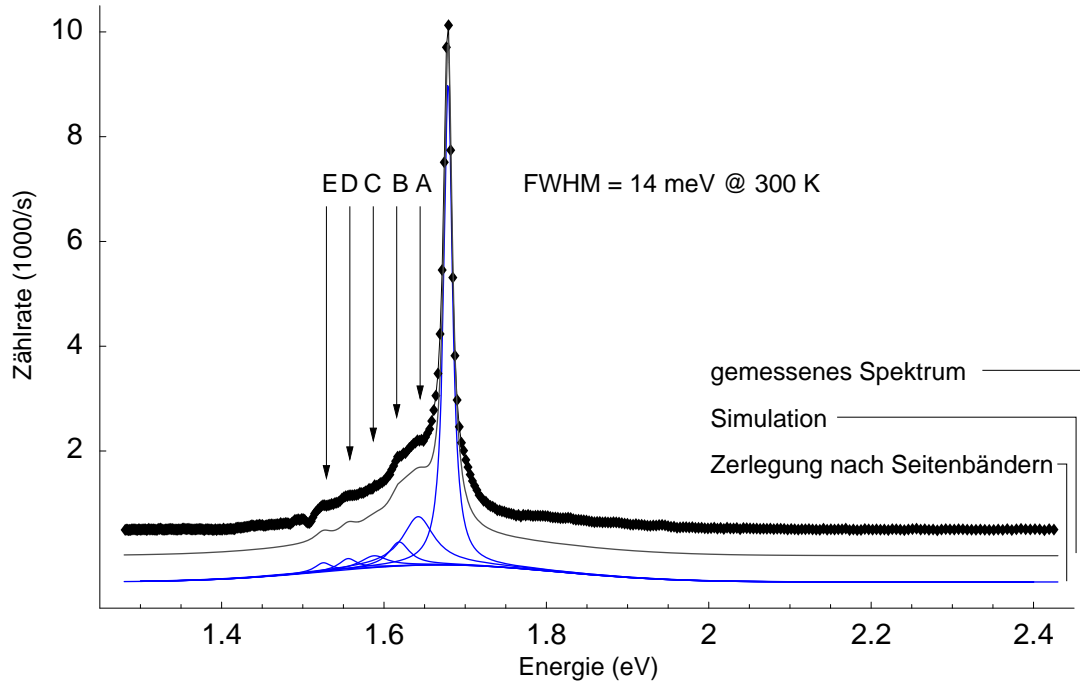


Abbildung 7.4: Spektrum des SiV-Zentrums bei 300 K. Dekonvolution und das sich daraus ergebende simulierte Spektrum sind nach unten versetzt gezeichnet; weitere Erläuterungen siehe Text.

Die niedrige Anregungsleistung (die Ramanlinie 2. Ordnung ist nicht sichtbar) legt allerdings den Schluss nahe, dass hier eine sehr hohe Defektkonzentration vorliegt, evtl. begleitet von vorherrschenden strahlenden Prozessen aufgrund guter Kristallstruktur. Die Daten eignen sich für eine grobe Dekonvolution in ZPL und Schwingungsmoden, wie sie in der untersten Kurve zu erkennen ist. Den einzelnen Linien liegt jeweils das Modell einer Lorentz-Linie gemäß

$$f(E) = f_0 \frac{\gamma^2}{(E - E_0)^2 + \gamma^2} \quad (7.3)$$

mit Parametern f_0 , γ und E_0 zugrunde. Man findet für die Lage der vibronischen Seitenlinien mit der Notation in Abb. 7.4:

A	→	1,642 eV	*)
B	→	1,619 eV	*)
C	→	1,588 eV	
D	→	1,556 eV	*)
E	→	1,525 eV	*)

Die mit ^{*}) gekennzeichneten Linien stimmen bezüglich ihrer Energie in etwa mit den in [32] ermittelten und z. T. in [38, 40] bestätigten überein. Angesichts der Tatsache, dass die Messung bei 300 K und einer spektralen Auflösung von ca. 3 nm durchgeführt wurde, können die Resultate zufriedenstellen. Als Breite der ZPL ergibt sich

$$\text{FWHM} \approx 14 \text{ meV}. \quad (7.4)$$

Das entspricht etwa 6 nm und steht in Übereinstimmung mit dem in [40] gemessenen Wert von 13,6 meV bei 300 K.

Die bisher präsentierten Spektren wurden bei sehr geringen Laserleistungen aufgenommen. Um das Verhalten der SiV-Emission bei hoher Pumpleistung festzustellen und so den Einfluss der Anregungsleistung auf das Spektrum zu studieren, wurden an einer festen Stelle (x,y,z) niedriger „Hintergrund“-Zählrate im Innern des CVD-Diamanten Spektren bei wachsender Anregungsleistung des Lasers aufgenommen (siehe Abb. 7.5). Die Fluoreszenz allgemein und insbesondere die Zählrate bei 738 nm bleibt auch bei maximaler Laserleistung ($\sim 90 \text{ mW}$) zeitlich konstant, ein Ausbleichen kann hier jedenfalls innerhalb der Beobachtungszeit von ca. 30 min nicht festgestellt werden. Man erkennt qualitativ eine

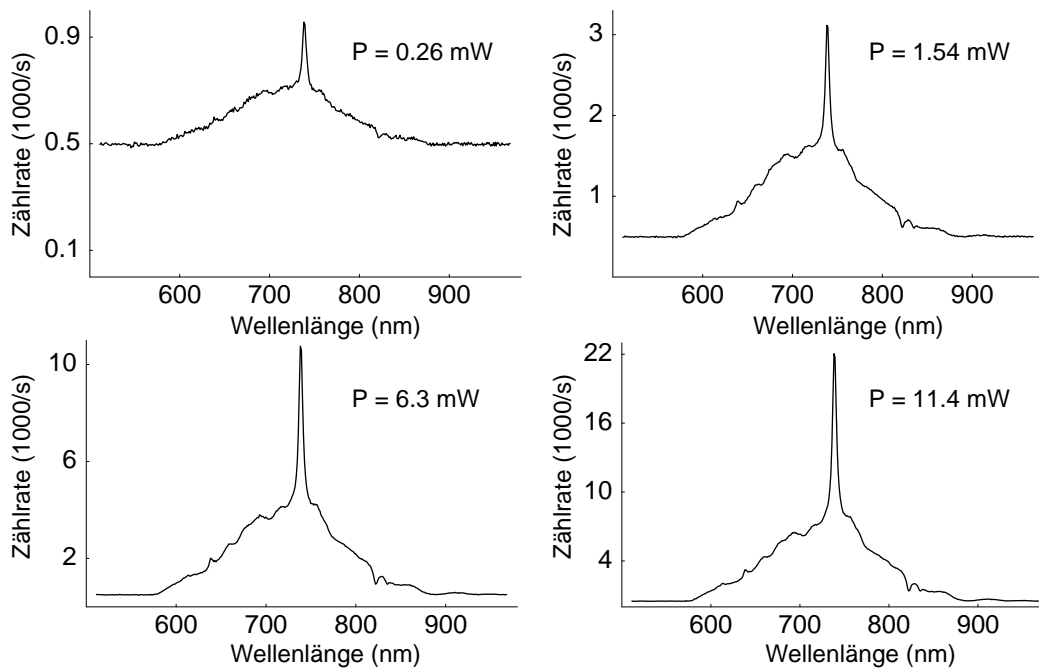


Abbildung 7.5: Einfluss der Anregungsleistung auf das Spektrum (aufgenommen an einer Stelle relativ niedriger Zählrate im Innern des CVD-Fensters).

Zunahme der SiV-Intensität mit der Anregungsleistung P , was durch eine numerische Analyse (siehe Abb. 7.6) bestätigt wird. Aufgetragen ist der Quotient

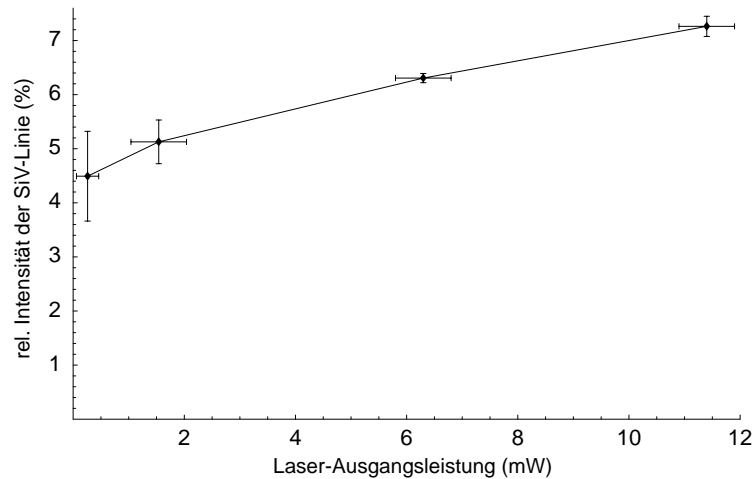


Abbildung 7.6: Zunahme des prozentualen Anteils der SiV-Linie an der Gesamtintensität mit wachsender Anregungsleistung. Die Daten basieren auf den Spektren in Abb. 7.5.

aus integrierter Netto-Zählrate der Si-Linie und Gesamtintensität. Der Anstieg des schmalbandigen Si-Anteils mit zunehmender Anregungsleistung geht daraus hervor. Ein ähnliches Verhalten ist auch an der Stelle (a) in Abb. 7.7 aus der Analyse der Korngrenzen feststellbar: Die bei schwacher Anregung kaum sichtbare Si-Linie wird mit wachsender Pumpleistung ähnlich markant wie in Abb. 7.5. Dieser Sachverhalt kann möglicherweise mit dem unterschiedlichen Sättigungsverhalten von SiV und den übrigen Fluoreszenzverursachern (NV u. a.) zusammenhängen, was wiederum die Vermutung einer relativ kurzen Zerfallszeit des angeregten SiV-Zustands stützt. Wie eingangs erwähnt, stellen die besonders hell lumineszierenden Korngrenzen das räumliche Charakteristikum der Probe dar. Wegen ihrer Bedeutung für die weiteren Schritte auf dem Weg zu einem geeigneten Trägermaterial für die Einzelphotonenquelle soll auf sie noch näher eingegangen werden. Abb. 7.7 zeigt links oben eine typische transversale Intensitätsverteilung im Innern des CVD-Fensters. Die Schrittweite $\Delta(x,y)$ beträgt $2 \mu\text{m}$ und die Laserleistung liegt wie bei den darunter abgebildeten Spektren bei ca. $0,13 \text{ mW}$. Unterschiede in den Spektren auf den sehr stark lumineszierenden hellen netzartigen Strukturen und den relativ leuchtschwachen Zwischenräumen andererseits sollen untersucht werden. Exemplarisch wird dazu jeweils ein Spektrum auf einer Korngrenze (b) und eines in unmittelbarer Nähe auf dunklerem Hintergrund aufgenommen. Die dargestellten Ergebnisse sowie weitere,

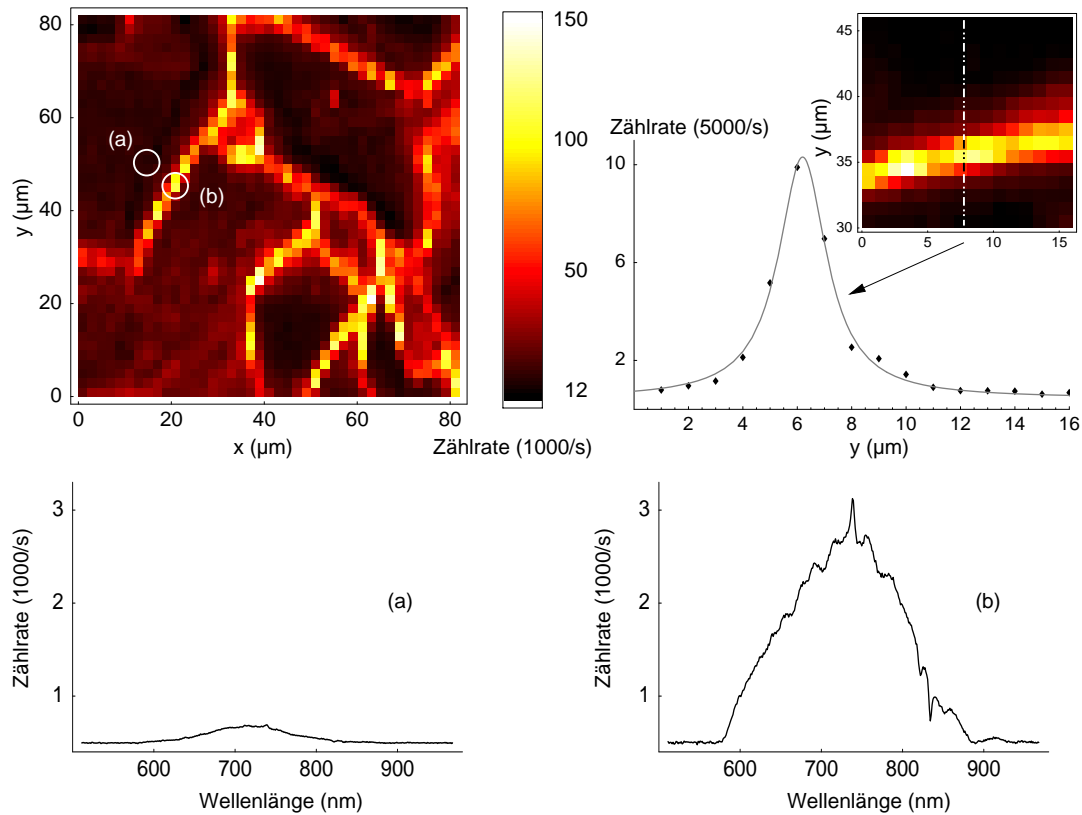


Abbildung 7.7: Zur Analyse der Korngrenzen. Die Kreise in der transversalen Intensitätsverteilung links oben bezeichnen die Aufnahmestellen der Spektren. Rechts oben ist die Fluoreszenzverteilung senkrecht zum Verlauf einer Korngrenze aufgetragen, um deren Halbwertsbreite abzuschätzen.

hier nicht aufgeführte Messungen deuten darauf hin, dass die hellen „Netzlinsen“ im betrachteten Spektralbereich breitbandig fluoreszieren. Demgegenüber zeigen die dunklen Zwischenräume – also das Innere der einzelnen Kristallite – eine weitaus schwächere Lumineszenz. Die vorhandenen ZPL's des NV-Zentrums (638 nm) und des SiV-Zentrums (738 nm) sind bei dem kleinen Maßstab kaum zu erkennen. Nach [39, 44] rührt die Fluoreszenz an den Korngrenzen zum einen von sp^2 -gebundenen Graphitphasen und amorphem Kohlenstoff her, üblichen Defekten am Übergang zwischen zwei CVD-Kristalliten. Zum anderen siedeln sich gerade in diesen Zonen während des Wachstums Verunreinigungen in Form von Fremdatomen an [44], so dass die Korngrenzen also besonders stark mit Defekten dekoriert sind. In Abb. 7.7 ist rechts oben der Verlauf der Fluoreszenzintensität näherungsweise senkrecht*) zu einer derartigen Korngrenze auf-

getragen. Aus der etwa lorentzförmigen Verteilung resultiert nach Korrektur der Winkelabweichung ^{*)} eine volle Halbwertsbreite von $2,2 \pm 0,5 \mu\text{m}$. Daraus ist zu schließen, dass sich CVD-Kristallite mit einer Größe von weniger als $2 \mu\text{m}$ nicht mehr als solche auflösen lassen und deshalb die entsprechende Diamantschicht gleichmäßig hell erscheint. Dies trifft offenbar auf die Substratseite zu, wo das Schichtwachstum mit Kristalliten im Sub-Mikrometer-Format beginnt [42]. Gleichzeitig erklärt sich damit die weitgehend strukturlose und starke Lumineszenz der in Abschnitt 6.2 betrachteten Proben, insbesondere der kaum $1 \mu\text{m}$ „dicken“, visuell transparenten Probe 2'.

Zum Abschluss der hier vorgestellten Untersuchungen sind noch einige Anmerkungen zur räumlichen Verteilung der beobachteten optischen Zentren angebracht. Um einen ersten Eindruck von der räumlichen Homogenität der Verunreinigungen zu gewinnen, wird anhand einer großflächigen zweidimensionalen Intensitätsverteilung bei fester Fokustiefe z im Kristallinneren ein Feld der Größe $(5 \mu\text{m})^2$ ausgewählt, auf dem die Zählrate niedrig („dunkle Zone“) und näherungsweise konstant ist. Sodann wird dieses Feld wie bei den Messungen in Abschnitt 6.2 mit einer Schrittweite $\Delta(x,y) = 0,5 \mu\text{m}$ abgerastert und auf bei mittleren Intensitäten auf jedem Punkt ein Spektrum gemessen. Abgesehen von geringen Schwankungen in der Zählrate von etwa $\pm 20\%$ weisen die Spektren keine wesentlichen Unterschiede auf. Sowohl die NV-Linie als auch die SiV-Linie treten flächendeckend in Erscheinung. Auf manchen Punkten (x,y) ist zudem das 2-Phononen-Ramanspektrum bei ca. 615 nm zu erkennen. Eines dieser Spektren ist in Abb. 7.8 exemplarisch dargestellt. Die Beobachtungen lassen folgenden Schluss zu: Die räumliche Auflösung des konfokalen Mikroskops beträgt transversal $0,5 \mu\text{m}$ und axial ca. $2 \mu\text{m}$. Damit lässt sich aus dem flächendeckenden Auftreten o. g. Linien und unter Annahme einer etwa homogenen Verteilung auch in z -Richtung eine untere Schranke für die Dichte n der NV- und SiV-Zentren abschätzen:

$$n > 2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}. \quad (7.5)$$

Es sollte jedoch beachtet werden, dass diese Überschlagsrechnung nur ein sehr grobes Maß darstellt. Die tatsächliche Defektdichte dürfte weit über diesem Grenzwert liegen. Prinzipiell sollte es möglich sein, auf der Basis des bekannten Fluoreszenzverhaltens einzelner NV-Zentren deren Dichte zu errechnen, wenn diese wie hier jenseits des Auflösungsvermögens liegt. Aus einfachen analytischen Überlegungen erhält man für die Dichte einen Ausdruck der Form

$$n = \frac{I_{ges}}{I_0} \left[\int_{R^3} g(\vec{r}) d^3r \right]^{-1}, \quad (7.6)$$

wobei I_0 die Intensität eines einzelnen Zentrums (bzw. dessen ZPL) im Fokus bezeichnet und I_{ges} die Gesamtintensität des Zentrums (bzw. dessen ZPL) darstellt,

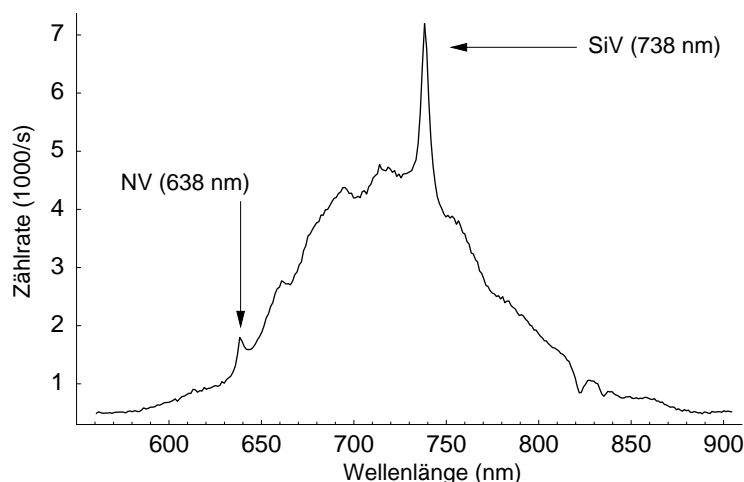


Abbildung 7.8: Typisches Spektrum aus dem Inneren eines Kornes. Als vorherrschende Lumineszenzzentren treten das NV-Zentrum mit der Null-Phononenlinie bei 638 nm und das SiV-Zentrum bei 738 nm hervor.

wie sie einem Spektrum wie in Abb. 7.8 entnommen werden kann. $g(\vec{r})$ beschreibt eine Gewichtsfunktion, die die Unschärfe des Mikroskops berücksichtigt und aus der 3D-Intensitätsverteilung eines einzelnen Defekts ermittelt werden muß. Die Methode sollte grundsätzlich die Bestimmung beliebig niedriger Defektdichten in Festkörpern erlauben, kommt aber bisher nur für das NV-Zentrum in Frage und wurde auch noch nicht praktisch angewendet. Einen gewissen Unsicherheitsfaktor im Hinblick auf die Messung von Linienintensitäten bei bestimmten Pumpleistungen stellt nämlich der möglicherweise vorhandene breitbandige Untergrund dar, der nicht von Punktdefekten wie dem NV- oder SiV-Zentrum verursacht wird. Dessen Beitrag zur Gesamtintensität und das Sättigungsverhalten sind noch nicht genau bekannt. Außerdem müssen u. U. Effekte wie Absorption und Fluoreszenzlöschung („Quenching“) berücksichtigt werden, um Dichtemessungen mit der angestrebten Genauigkeit auf eine solide Basis zu stellen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die beschriebenen Messungen erstmals direkten Aufschluss über die fluoreszenzbezogene räumliche Struktur in CVD-Diamant und das Spektrum des SiV-Defekts bei 300 K geben konnten. Dennoch liegt die Defektdichte auch in den leuchtschwächsten Zonen im Innern der einzelnen Kristallite noch weit über dem für die Einzeldefektspektroskopie notwendigen Wert von $n \leq 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Der nächste Abschnitt versucht daher Wege aufzuzeigen, auf denen dieses Dilemma zu beseitigen sein sollte.

7.3 Erzeugung einzeln detektierbarer SiV - Defekte

Nach den an heteroepitaktischen CVD-Proben gewonnenen Erkenntnissen stellt sich die Frage, wie sich einzeln adressierbare SiV-Zentren produzieren lassen. Das Problem besteht aus zwei Teilen: Erstens ist die Dichte der SiV-Zentren auf einen passenden Wert (etwa $10^{10\pm 1} \text{ cm}^{-3}$) einzustellen und zweitens ist für einen ausreichend geringen spektralen Untergrund (idealerweise Ramanlicht) zu sorgen. Drei dafür in Frage kommende Methoden, nämlich Dotierung und Ionenimplantation von HPHT-Kristallen sowie das homoepitaktische CVD-Wachstum, werden im folgenden knapp beschrieben.

7.3.1 Dotierung

Die einfachste und natürlichste Vorgehensweise besteht im Prinzip darin, Einzelkristalle bereits beim Wachstum im HPHT-Verfahren mit Si zu dotieren. Der als Katalysator für die Kristallzucht zugesetzten Fe-/Ni- oder Co-Legierung wird zu diesem Zweck eine geringe Menge Si beigemischt. Die Si-Atome werden so zu einem gewissen Prozentsatz in den entstehenden HPHT-Kristall eingebaut. Ähnlich wie beim NV-Zentrum kann die Feineinstellung der SiV-Dichte anschließend durch e^- -Bestrahlung und Ausheizen bis etwa 800°C erfolgen. Für höhere Defektkonzentrationen wurde das Verfahren bereits erfolgreich praktiziert [45, 46] und sollte demnach auch bei geringeren Si-Konzentrationen funktionieren. Der primär für die Herstellung dotierter HPHT-Diamanten in Frage kommende kommerzielle Hersteller zeigt sich an dem Projekt jedoch desinteressiert, so dass eine Realisierung derzeit fraglich erscheint.

7.3.2 Ionenimplantation

Bei der Ionenimplantation werden die gewünschten Dotieratome gewöhnlich in einfach ionisierter Form mittels eines Teilchenbeschleunigers in den Kristall geschossen. Bei gängigen Halbleitermaterialien wie Si dient die Methode seit Jahren standardmäßig zur Herstellung p- oder n-leitender dünner Schichten knapp unter der Oberfläche. Im Fall von Diamant steht man vor dem Problem, dass die unvermeidlichen Strahlenschäden wegen der Härte und Metastabilität des Materials nicht vollständig regenerierbar sind. Konkret stößt das Ion beim Eindringen in den Kristall unelastisch mit Elektronen und C-Kernen, die auf diese Weise von ihren Gitterplätzen verdrängt werden, ihrerseits wieder C-Atome aus den Bindungen reißen und so Kanäle von Leerstellen hinterlassen [27, 25]. Die implantierten Ionen selbst dringen je nach Strahlenergie nur wenige 100 nm

in den Kristall ein und sind bzgl. ihrer Tiefe etwa gaussverteilt. Um die Strahlenschäden auf ein Minimum zu senken, ist nach der Implantation das Ausheizen der Probe erforderlich, das einige der Fehlstellen mit C-Atomen auffüllt und so die Kristallstruktur annähernd wieder herstellt [47, 48]. Da dieses Verfahren be-

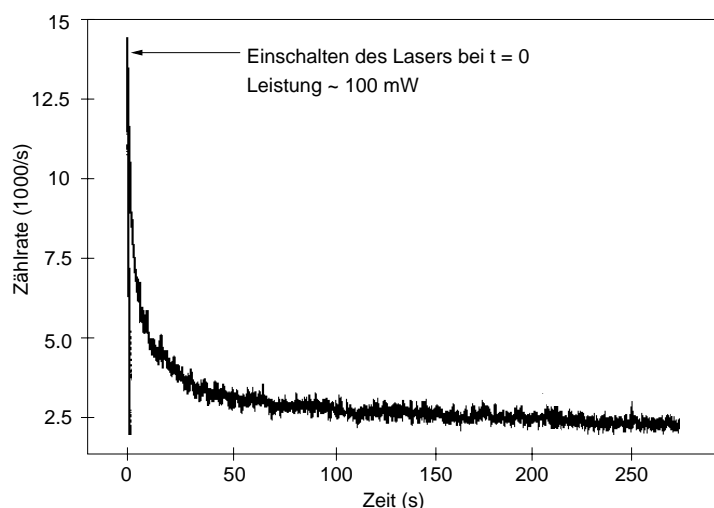


Abbildung 7.9: Zeitlicher Verlauf des Ausbleichens auf der rückseitigen Oberfläche des 1b-Diamanten.

reits mehrfach erfolgreich zur Erzeugung optisch aktiver SiV-Zentren eingesetzt wurde [30, 31], wird in der vorliegenden Arbeit dieser Weg ebenfalls besprochen. Dazu werden vier vorhandene HPHT-Kristalle ausgewählt, 3 Stück vom Typ „1b“ und ein 2a-Exemplar. Aufgrund der geringen Eindringtiefe der Ionen ist auf eine möglichst fluoreszenzarme Oberfläche zu achten. Bei der diesbezüglichen Voruntersuchung stellte sich heraus, dass die bereits in [10] beobachteten Intensitätsmaxima auf Vorder- und Rückseite einiger 1b-Proben ausbleichen. Abb. 7.9 stellt den zeitlichen Verlauf der Fluoreszenzintensität auf einer zufälligen Stelle der Rückseite des Kristalls bei voller Laserleistung dar. In Abb. 7.10 ist links noch einmal eine typische axiale Fluoreszenzverteilung zu sehen, während rechts die Abnahme der ausbleichenden Oberflächenlumineszenz (oben) nach einmaliger (Mitte) und zweimaliger (unten) Bestrahlung in zunehmender Tiefe z dargestellt ist. Abb. 7.11 analysiert die Zeitabhängigkeit des Ausbleichens. Die Daten dieser und ähnlicher Messungen folgen einem multiexponentiellen Modell der Form

$$I(t) = I_0 + \sum_{i=1}^3 c_i e^{-t/\tau_i} \quad (7.7)$$

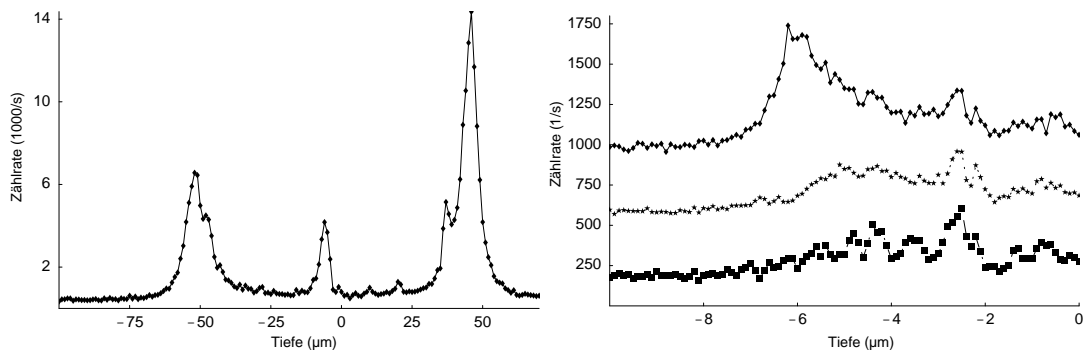


Abbildung 7.10: Zum Phänomen der ausbleichenden Oberflächen einiger 1b-Diamantproben. Links die axiale Fluoreszenzverteilung auf einer zufällig ausgewählten Stelle der Vorderseite, rechts die Abnahme der Oberflächenfluoreszenz auf einer anderen Stelle bei wiederholter Bestrahlung in zunehmender Tiefe. Die Zählraten der oberen und mittleren Kurve sind zur besseren Übersicht um jeweils 400 s^{-1} versetzt dargestellt.

mit Zeitkonstanten τ zwischen 0,1 ns und mehreren ns. Die ausbleichende Lumineszenz könnte demnach auf mindestens 3 verschiedene Verursacher zurückgehen. Messungen ergaben, dass durch mehrminütige Bestrahlung mit 532 nm die Oberflächenfluoreszenz dauerhaft z. T. bis auf Raman-Niveau reduziert werden kann. Da es sich aber wegen der Größe der Diamanten um ein extrem aufwendiges Verfahren handelt, wurde versucht, mit einem 350nm-UV-Laser die Kristalle großflächig zu bestrahlen. Während bei einer Probe die Prozedur tatsächlich Wirkung zeigte, war im Fall des zweiten – allerdings kürzer bestrahlten – 1b-Diamanten dieser Art kein signifikanter Einfluss festzustellen. Die Implantation selbst wurde schließlich an der Universität Göttingen bei 400 keV und $T = 80 \text{ K}$ mit Strahlendosen zwischen 10^8 und 10^{12} cm^{-2} durchgeführt und anschließend selbst bei 800°C ausgeheizt. Aufgrund der gewählten Strahlendosen ist eine mittlere Si-Flächendichte von $1 \mu\text{m}^{-2}$ und mehr und in der Folge das Auftreten von evtl. isolierten SiV-Defekten zu erwarten, sofern die Fehlstellenlumineszenz bei $\lambda \geq 740 \text{ nm}$ im im vertretbaren Rahmen bleibt. Systematische Untersuchungen der implantierten Proben stehen allerdings noch aus.

7.3.3 homoepitaktische Nano-Diamanten

Den experimentell reizvollsten Zugang zum gestellten Problem bietet vermutlich folgendes Vorgehen:

- Um die störenden Korngrenzen zu vermeiden und so die Defektdichte zu

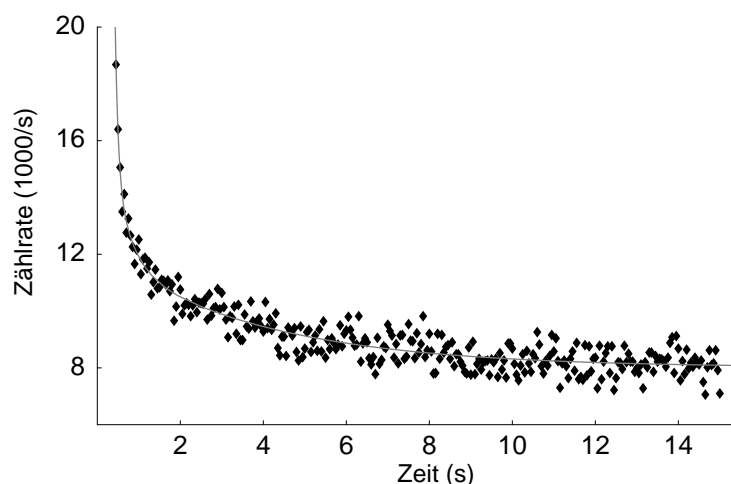


Abbildung 7.11: Zeitlicher Verlauf der Oberflächenfluoreszenz auf einer zufällig ausgewählten Stelle der Vorderseite eines 1b-Diamanten, die durchgezogene Kurve repräsentiert einen exponentiellen Fit (siehe Text).

reduzieren, wird zunächst ein CVD-Film unter optimalen Bedingungen und Zusatz geeigneter Mengen Si homoepitaktisch gewachsen.

- Da die Defektdichte des SiV-Zentrums und anderer (störender) Punktdefekte auch dann noch über dem Grenzwert von $n = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ liegen dürfte, werden mittels hochreaktivem Sauerstoff-Plasma pixelartige Strukturen in die homoepitaktische CVD-Schicht geätzt, sodass effektiv fixierte Nanokristalle entstehen.
- Wie Abb. 7.12 zeigt, nimmt die mittlere Defektanzahl pro „Pixel“ wie d^3 ab, wenn d die Kantenlänge eines annähernd würfelförmigen Nanokristalls bezeichnet.
- Verbliebene unerwünschte Lumineszenzzentren mit einer ZPL $< 650 \text{ nm}$ können durch Anregung mit einem roten Diodenlaser bei 650 nm oder 690 nm „gelöscht“ werden. Obwohl damit auch Nachteile wie eine schlechtere räumliche Auflösung [10] und technische Probleme mit der Strahlteilung etc. verbunden sind, liegen die Vorteile auf der Hand: Neben einer effizienteren Anregung der SiV-Lumineszenz [25] wäre damit das später angestrebte Pulsen [11, 24] sehr einfach zu realisieren.

Mit ersten Vorbereitungen zu diesen Versuchen wurde bereits begonnen, die Durchführung geht jedoch über den Rahmen dieser Arbeit hinaus und soll in den kommenden Monaten systematisch anlaufen.

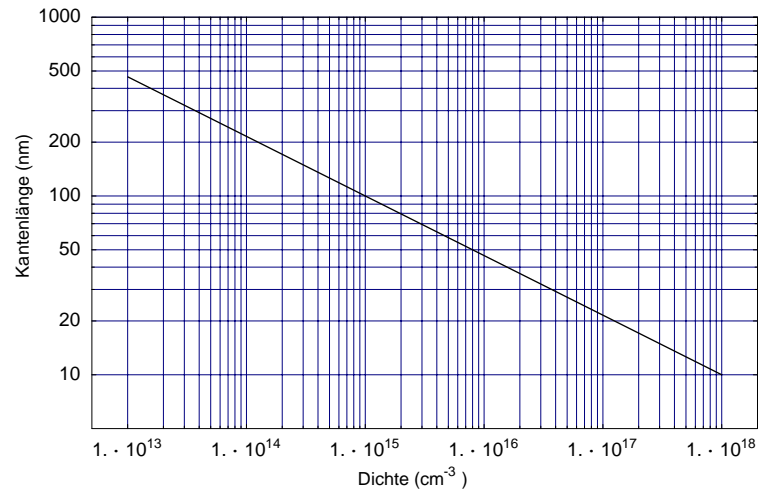


Abbildung 7.12: Kantenlänge kubischer nanokristalliner Diamanten, die bei gegebener Defektdichte erforderlich ist, um im Mittel je ein Lumineszenz-Zentrum pro Nanokristall zu erhalten.

Kapitel 8

Der 694 nm - Defekt in 1b-Diamant

Wie in [10] bereits berichtet wird, weist der untersuchte 1b-Diamant neben dem relativ häufigen NV-Zentrum einen weiteren optisch aktiven Defekt mit einer ungewöhnlich scharfen Lumineszenzlinie bei ca. 694 nm auf, dessen Herkunft bis vor kurzem ungeklärt war. Nach neueren Erkenntnissen dürften Eisen-Verunreinigungen für die Lumineszenz verantwortlich sein. Im folgenden Kapitel sollen nun einige Untersuchungen am 694nm-Zentrum dargestellt und in dem Zusammenhang diskutiert werden, inwieweit dieser Defekt als neue Einzelphotonenquelle in Betracht kommt.

8.1 Leuchtkraft, Häufigkeit und Größe

Im Gegensatz zum NV-Zentrum konnte das in Rede stehende Zentrum nur sehr selten beobachtet werden. Obwohl der Defekt eine ungewöhnlich große Leuchtkraft besitzt und sich daher auf einem zweidimensionalen Rasterbild selbst bei nicht optimaler Justage in z-Richtung viel eher bemerkbar macht als das NV-Zentrum, war auf einer Fläche von $(80 \mu\text{m})^2$ i. d. R. keines dieser Objekte auszumachen. In einem einzigen Fall ließen sich zwei 694nm-Defekte mit einem Abstand von ca. $50 \mu\text{m}$ quasi abwechselnd beobachten. Bisher wurde zwar keine explizite Dichtebestimmung anhand eines 3D-Scans durchgeführt, die Anzahl-dichte liegt jedoch sicher mindestens eine Größenordnung unter der NV-Häufigkeit:

$$n_{694} \leq 10^8 \text{cm}^{-3} \quad (8.1)$$

Darauf deuten auch frühere großräumige Untersuchungen des Kristalls hin [10], wonach die ca. 70 beobachteten Defekte in einem Volumen von $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$ eine durchweg ungefähr gleiche Helligkeit aufwiesen. Trotzdem konnten

im Lauf der Zeit, wohl begünstigt durch die hohe Leuchtkraft, etwa 10 mutmaßlich verschiedene Exemplare des 694nm-Zentrums beobachtet und z.T. untersucht werden. Alle diese Zentren blieben räumlich fixiert und wiesen eine dem Auflösungsvermögen entsprechende räumliche Ausdehnung auf. Anhand des gewöhnlichen zwei- bzw. dreidimensionalen Scans unterschieden sich die Defekte daher nur durch ihre Helligkeit von den NV-Zentren. An einem Exemplar, im folgenden “ X_{694} ” genannt, wurden über einen Zeitraum von ca. zwei Monaten hinweg mehrere möglichst quantitative Messungen vorgenommen. Vorteilhaft wirkte sich dabei aus, dass X_{694} in praktisch gleicher Tiefe z ca. $20 \mu\text{m}$ von dem im ersten Teil der Diplomarbeit untersuchten NV-Zentrum (im folgenden als “ NV^* ” bezeichnet) entfernt lag. Damit ergab sich die Möglichkeit, vergleichende Untersuchungen an den beiden Defekten anzustellen, die nicht durch veränderte Aufsammelleffizienz, Justage o. ä. verfälscht sein sollten. Zunächst wurde versucht, die maximalen Leuchtkräfte der beiden Zentren zu vergleichen. Zu diesem Zweck wurde mit $P_{laser} = 42 \text{ mW}$ eine Anregungsleistung gewählt, bei der sowohl NV-Zentrum als auch X_{694} sättigen bzw. zumindest einen Großteil ihres Emissionsvermögens erreicht haben. Zur Bestimmung der NV-Fluoreszenz konnte auf ein Raman-Filter vor den Detektoren verzichtet werden, während es sich im Fall von X_{694} als notwendig erwies, die Linearität der Detektoren (vgl. Abschn. 3.2.3) durch ein Graufilter mit einer Transmission $T \leq 10\%$ sicher zu stellen. Abb. 8.1 stellt die auf die Graufilterwirkung korrigierten Helligkeiten von NV-Defekt und X_{694} gegenüber. Der Anschaulichkeit wegen wurde für beide Zentren dieselbe Skala gewählt, d. h. gleicher Grauton entspricht gleicher Intensität. X_{694} würde demnach ein unmittelbar benachbartes NV-Zentrum überblenden. Abb. 8.2 zeigt die Intensitätsprofile mit auf das jeweilige Maximum bezogener Skalierung: Aus den untergrundkorrigierten Zählraten ergibt sich eine Abschätzung für das Leuchtkraftverhältnis der beiden Defekte:

$$\frac{I(X_{694})}{I(NV^*)} = 70 \pm 30 \quad (8.2)$$

Hier wurden die über den Scanbereich $\Delta x \Delta y$ integrierten Zählraten benutzt, um ggf. eine nicht optimale Fokussierung auszugleichen. Bei der Unsicherheit von ca. 43% handelt es sich um den Maximalfehler aufgrund der Unsicherheit in der Raman-Bestimmung. Zumindes der spezielle Defekt “ X_{694} ” ist damit um bis zu 1 bis 2 Größenordnungen(!) heller als ein NV-Zentrum. Umso erstaunlicher erscheint vor diesem Hintergrund die Tatsache, dass auch X_{694} von quasi punktförmiger Struktur sein dürfte. Darauf deuten jedenfalls die über NV^* und X_{694} durchgeführten 3d-Scans hin, nach denen im Rahmen der Messgenauigkeit beide Zentren gleiche Form und Größe an der Auflösungsgrenze besitzen.

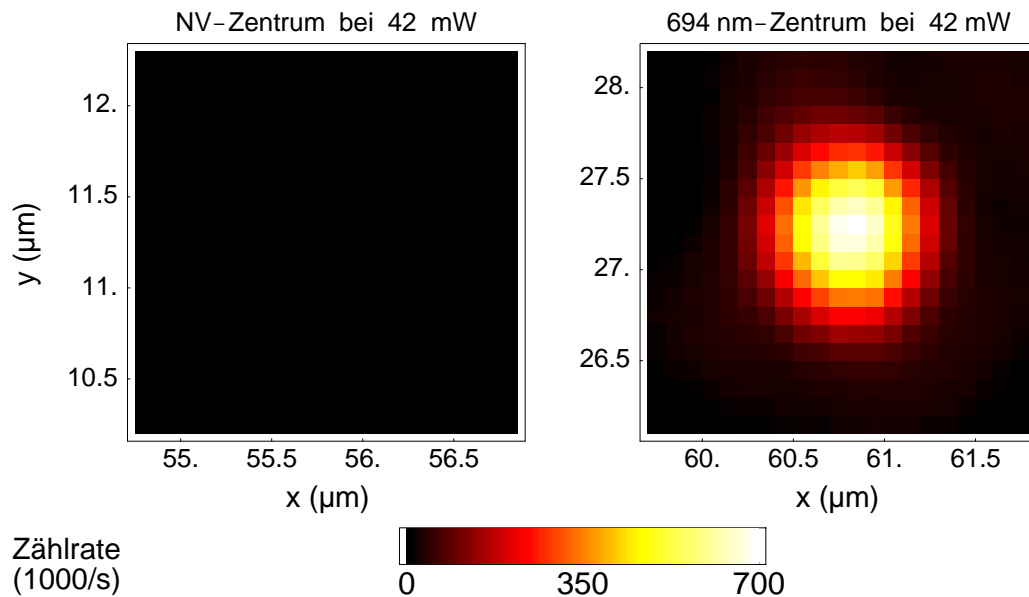


Abbildung 8.1: NV^* (links) und X_{694} (rechts) bei Anregung mit $P = 42$ mW, das NV-Zentrum ist bei gleicher Graustufenskalisierung nicht mehr sichtbar

8.2 Spektrum und Sättigungsverhalten

Wie bereits erwähnt, dominiert eine ausserordentlich intensive Linie bei ca. 694 nm das Lumineszenzspektrum (Abb. 8.3). Betreibt man das Gitterspektrometer mit einer Auflösung $\Delta\lambda \simeq 1.5$ nm, so ergibt sich eine Halbwertsbreite von ca. 2.5 nm. Dieser Wert liegt freilich noch einen Faktor 10^5 über der natürlichen Linienbreite eines typischen Übergangs mit 10 ns Lebensdauer. Auf der langwelligen Seite der 694nm-Linie sind im gegenseitigen Abstand von etwa 7 nm 3 Linien zu erkennen, von denen die langwelligste am stärksten hervortritt. Am kurzwelligen Ende des Spektrums ist ebenfalls eine relativ breitbandige Emission zu beobachten, deren Stärke in Richtung auf die Hauptlinie etwas abklingt. Die Spektren der meisten anderen untersuchten Defekte dieses Typs unterscheiden sich im übrigen kaum von dem hier dargestellten, insbesondere wie der Ausläufer des Spektrums auf der langwelligen Seite fast immer die gleiche Unterstruktur mit einer relativ deutlichen Erhebung bei ca. 717 nm auf. Lediglich zwei Exemplare zeigten deutliche Abweichungen (Abb. 8.4) vom Durchschnitt. Allerdings ist nicht auszuschließen, dass im Fall der besonders schwach ausgeprägten Verbreiterung eine vorübergehend verminderte Laserleistung oder Aufsammeleffizienz die Zählrate während der Messung gesenkt hat. Andererseits könnte der massive Untergrund des zweiten Spektrums in Abb. 8.4 auf ein

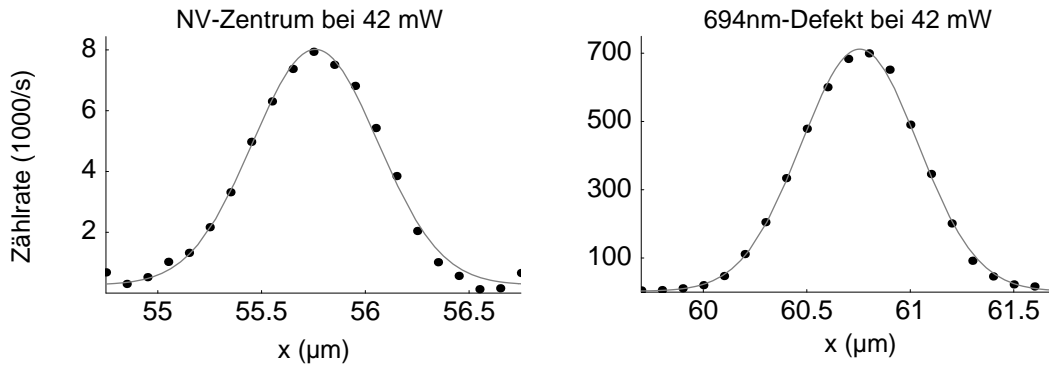


Abbildung 8.2: Intensitätsprofile von NV^* und X_{694} in x-Richtung, die durchgezogenen Kurven sind Gauss-Fits an die Messwerte.

zweites Lumineszenzzentrum mit nur wenigen Gitterkonstanten Abstand vom 694nm-Defekt zurückzuführen sein. Als möglicher Kandidat kommt wegen der vage erkennbaren Linie bei 738 nm z. B. wieder ein NV-Zentrum in Frage.

Neben der rein spektralen Verteilung des Lichts ist auch die Frage von Interesse, wie die emittierte Intensität von der Anregungsleistung abhängt. Zunächst erscheint es denkbar, dass sich die *relativen* Anteile der 694nm-Linie und des breitbandigen Unterbaus am Gesamtspektrum mit der Anregungsleistung ändern. Um dies zu untersuchen, wurde das Spektrum einmal unter sehr niedriger und dann unter maximaler Anregungsleistung aufgenommen, wobei im letzten Fall wieder das Graufilter eingesetzt werden musste. Abb. 8.5 zeigt die Differenz der relativen prozentualen Anteile der verschiedenen Wellenlängen am jeweiligen Gesamtspektrum zwischen starker und schwacher Anregung. Ein Wert $\Delta I_{rel} = -2.3$ für $\lambda_0 = 649$ nm bedeutet also beispielsweise, dass sich der Anteil der Intensität auf λ_0 von 18% unter schwacher auf 15.7% unter starker Anregung reduziert. Der kurzwellige Anteil des Spektrums einschließlich der 694nm-Linie nimmt demnach mit zunehmender Anregungsleistung ab, der langwellige hingegen zu. Abgesehen von diesen recht geringen Änderungen im Spektrum wächst natürlich die Emission des Zentrums in bestimmter Weise mit der eingestrahnten Anregungsintensität. Abb. 8.6 zeigt diese Abhängigkeit wieder für das Testzentrum X_{694} . Die Messung wurde durch das auf $\lambda = 694$ nm eingestellte Spektrometer vorgenommen. Trotzdem war es wie schon beim Leuchtkraftvergleich mit NV^* erforderlich, die maximale Zählrate des Detektors mit einem Graufilter auf ca. $20 \cdot 10^3 s^{-1}$ zu begrenzen (vgl. Abschnitt 6.2). Wie der in Abb. 8.6 eingezeichnete Fit zeigt, folgen die Daten sehr gut dem vom NV-Zentrum bekannten Modell

$$r(P) = r_0 \cdot \frac{P}{P + P_{sat}} + \alpha \cdot P \quad (8.3)$$

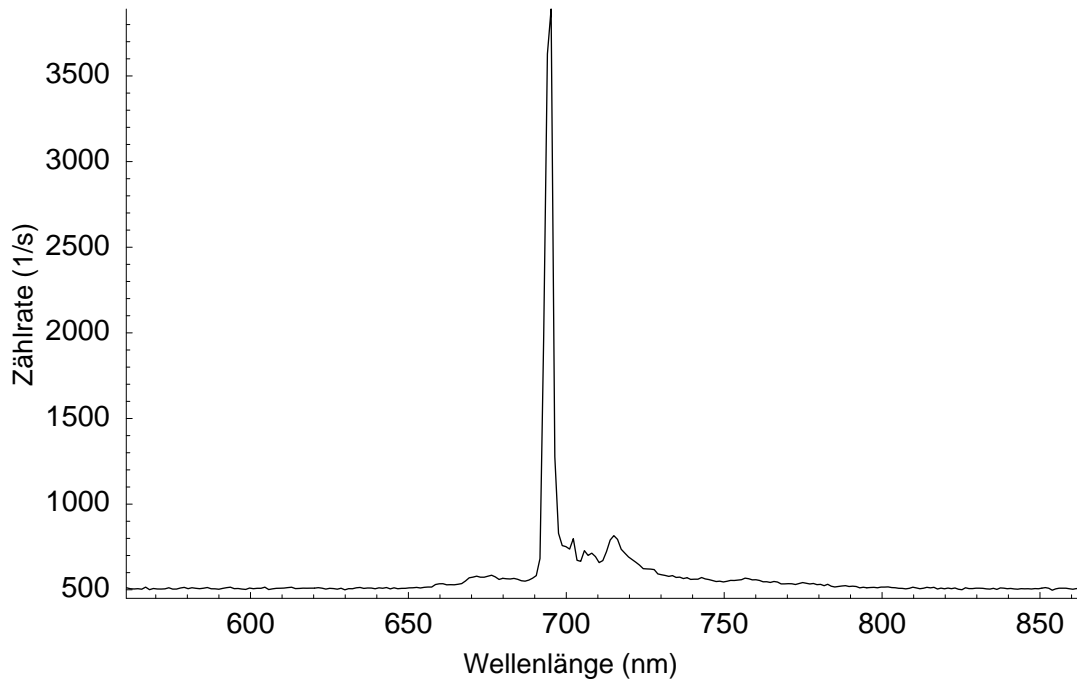


Abbildung 8.3: Spektrum von X_{694} , die Ramanlinie bei ca. 615 nm verschwindet aufgrund der extrem geringen Anregungsleistung im Detektorrauschen

Die Sättigungsleistung ergibt sich daraus zu $P_{sat} \simeq 2mW$, ein Wert, der noch unter dem für NV^* ermittelten liegt (vgl. Abschn. 4.1). Für große Anregungsleistungen oberhalb von etwa 30 mW nimmt die Lumineszenz linear zu. Dieser Anstieg kann wegen der Messung durch das Spektrometer *nicht*, wie man vielleicht zunächst vermuten könnte, auf Ramanlicht oder auch direkte Laserstrahlung zurückgeführt werden. Ferner ergab eine analoge Messung einige μm neben X_{694} im defektfreien Diamant eine maximale Zählrate bei voller Laserleistung von etwa $100 s^{-1}$, ein völlig vernachlässigbarer Wert. Aus dem gleichen Grund scheint auch eine mögliche Eigenfluoreszenz optischer Komponenten des konfokalen Mikroskops ausgeschlossen. Im übrigen wurde der Versuch ohne Spektrometer, stattdessen unter Verwendung des aus Kapitel 4 bekannten 700nm-Interferenzfilters wiederholt - mit nahezu gleichen Ergebnissen, die zudem noch eine frühere Messreihe auf dem in Abb. 8.4 rechts dargestellten Defekt bestätigen, sodass der Verlauf von $r(P)$ als ziemlich sicher gelten kann.

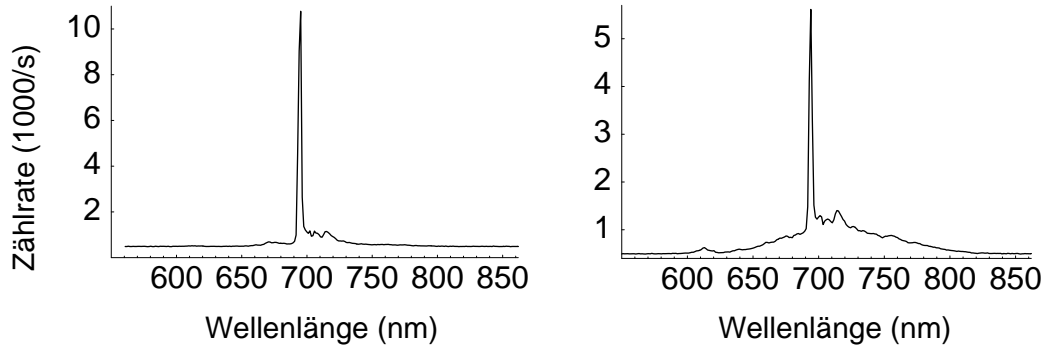


Abbildung 8.4: Spektren von 694nm-Defekten mit relativ schwachem (links) und ungewöhnlich starkem (rechts) breitbandigen Unterbau.

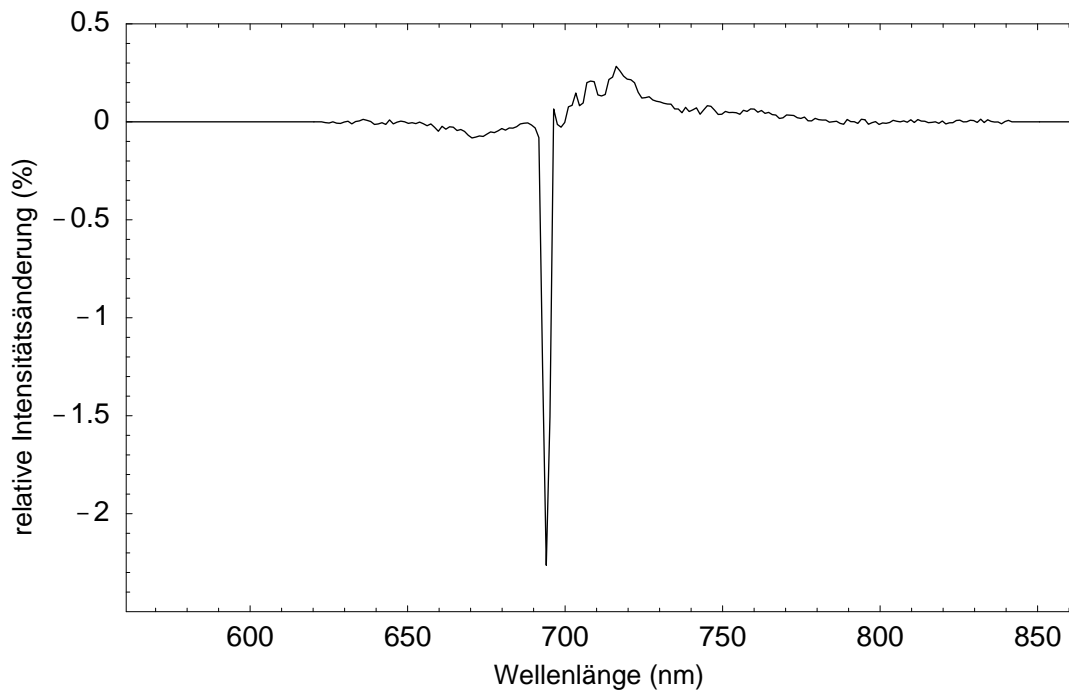


Abbildung 8.5: Änderung der relativen spektralen Anteile von X_{694} an der Gesamtemission beim Übergang von schwacher zu starker Anregung.

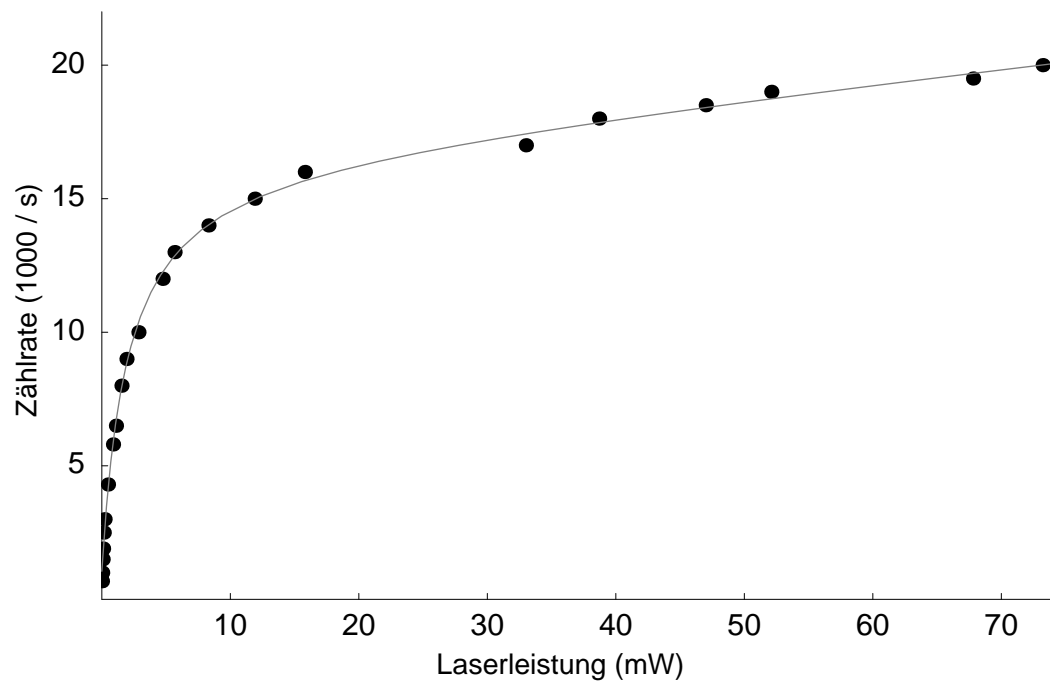


Abbildung 8.6: “Sättigungsverhalten” von X_{694} , gemessen durch das Spektrometer auf $\lambda = 694$ nm. Die durchgezogene Kurve beschreibt einen Fit an die Messpunkte (siehe Text).

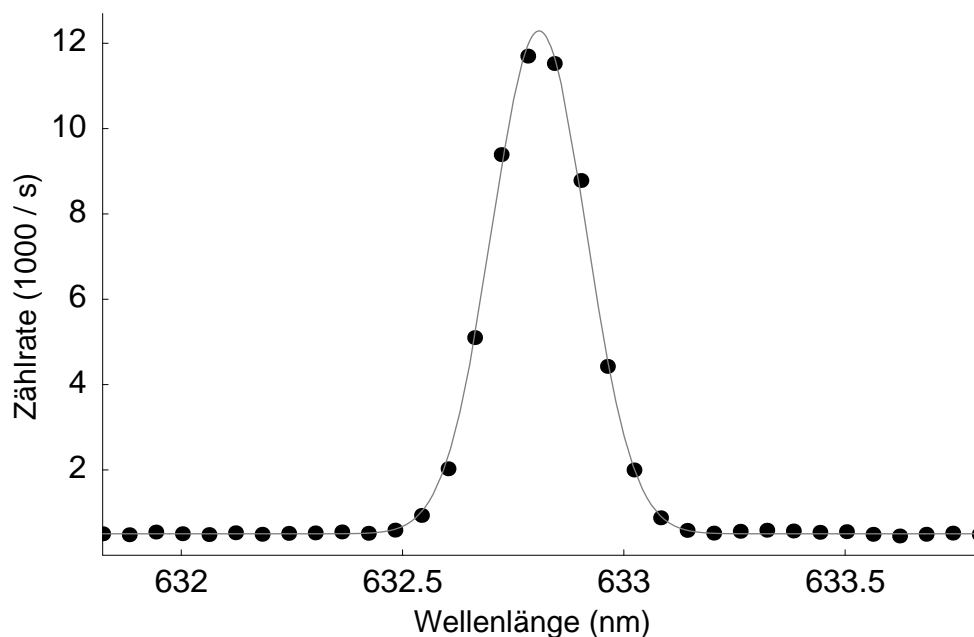
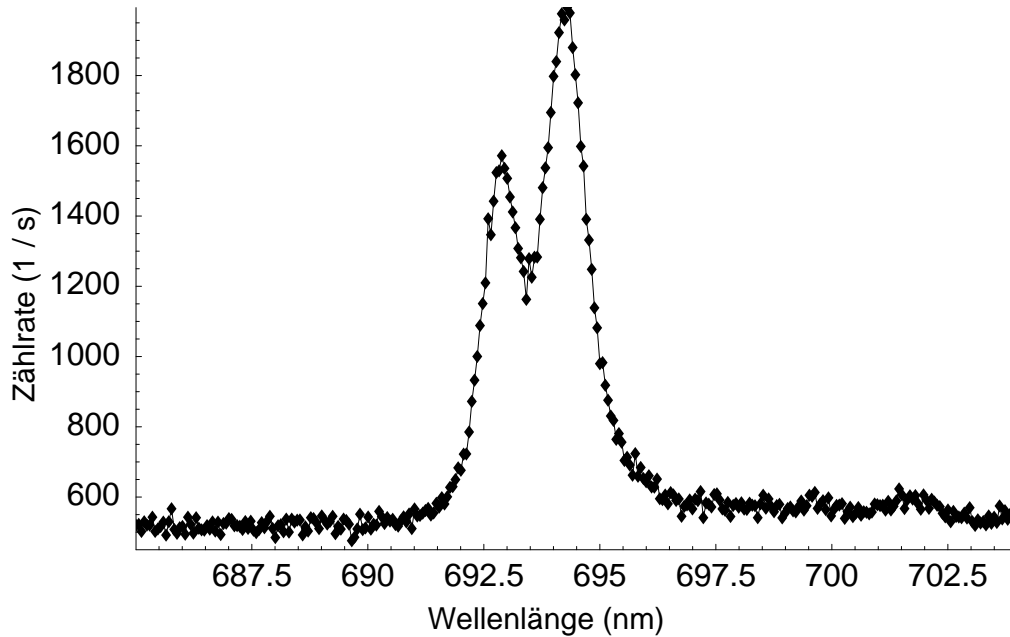


Abbildung 8.7: Die 632.8nm-Linie des HeNe-Lasers in 1. Beugungsordnung. Die Auflösung des Spektrometers ergibt sich zu $\Delta\lambda = 0.5$ nm.

8.3 Herkunft der 694nm-Linie

K. Iakoubovskii beobachtete vor einiger Zeit eine ungewöhnlich scharfe und helle Lumineszenzlinie bei ca. 693 nm in HPHT-Diamanten niedriger Stickstoffkonzentration [49]. Als Ursache wurden aufgrund von Dotierexperimenten zunächst Co-Verunreinigungen vermutet, später stellte sich jedoch Eisen (Fe) als wahrscheinliche Ursache dieser Linie heraus [50]. Nun ist bei der Zuordnung einer Spektrallinie allein anhand einer etwa "passenden" Wellenlänge schon wegen der Vielfalt der Defekte in Diamant stets Vorsicht geboten. Die Vermutung, dass es sich bei den 694nm-Defekten tatsächlich um mutmaßliche Fe-Zentren handelt, sollte daher noch durch weitere Kriterien überprüft werden. Relativ einfach ließ sich eine eventuelle Feinstruktur der 694nm-Linie messen, da hierzu nur die Auflösung unseres Spektrometers verfeinert werden musste. Dies geschah - auf Kosten der Zählrate - durch Verlängerung des Gitter-Detektor-Abstandes unter zusätzlicher Verwendung einer $75 \mu\text{m}$ -Lochblende. Aus der Breite der HeNe-Linie (Abb.8.7) ergab sich das Auflösungsvermögen zu $\Delta\lambda = 0.5$ nm. Abb. 8.8 zeigt schließlich die Feinstruktur der fraglichen Linie, wiederum gemessen an X_{694} . Es tritt also eine Dublettaufspaltung zu Tage, anhand derer die Herkunft der Linie nun mit großer Sicherheit geklärt werden kann. Iakoubovskii et al. stellten

Abbildung 8.8: Substruktur der 694nm-Linie von X_{694}

nämlich bei ihren Lumineszenzuntersuchungen eine ganz ähnliche Substruktur zweier verschieden intensiver Peaks fest, die sie einer Aufspaltung des Grundzustandes zuschreiben.¹ Die Energie der beiden Unterlinien wird in [50] zu 1.7869 eV (693.9 nm) bzw. 1.7906 eV (692.4 nm) angegeben², während die hier gewonnenen Resultate Wellenlängen von ca. 694.3 nm bzw. 692.9 nm liefern, was einer Abweichung von 0.5 nm entspricht. Ungenauigkeiten in der Kalibrierung unseres einfachen Spektrographen sind natürlich möglich. Andererseits berichten Iakoubovskii et al. von einer (simultanen) Verschiebung der beiden Linien um ca. 2.5 meV (1 nm), wenn die Messungen statt bei Raumtemperatur, worauf sich obige Angaben beziehen, bei 77 K durchgeführt wurden. Außerdem scheinen spannungsinduzierte Linienverschiebungen denkbar. Insofern kann die Abweichung durchaus auch “physikalischer” Natur sein. Hinsichtlich der Linienbreiten stimmen die eigenen Messungen mit den von Iakoubovskii et al. ermittelten allerdings sehr gut überein. Ein Fit ergab Halbwertsbreiten von 2.4 meV bzw. 2.2 meV, indes in [50] von 2.4 meV berichtet wird. Im übrigen folgen die Teillinien in 8.8 jeweils klar einem Lorentzprofil, was auf das Fehlen inhomogener Verbreiterungen hindeutet. Betrachtet man zu guter Letzt noch die Größe der Aufspaltung,

¹noch nicht veröffentlichte Ergebnisse, daher hier nicht abgebildet

²in der Festkörperspektroskopie ist die eV-Skala der gängige Maßstab

so findet man $\Delta\lambda_{split} = 3.6$ meV gegenüber Iakoubovskii's Wert von 3.7 meV.

8.4 Diskussion

Die Identifikation der 694nm-Linie mit der in [49, 50] dokumentierten darf somit als ziemlich gesichert gelten. Dass der Defekt dort mit Eisen in Verbindung gebracht wird, erscheint plausibel, da die positiv auf 694nm-Lumineszenz getesteten Proben fast durchweg mit Fe-Katalysatoren hergestellt worden sind. Dies trifft auch auf den in der vorliegenden Arbeit verwendeten Kristall zu, für den nach Auskunft von Drukker Fe- und Ni- Katalysatoren zum Einsatz kamen. Wie Iakoubovskii weiter berichtet, detektierte er nur in Proben sehr geringer Stickstoff-Dichte ~ 1 ppb ein messbares Signal und schloss daraus auf einen positiven Ladungszustand des Fe-Zentrums. Einen weiteren Hinweis auf die atomare Struktur sollte die Sättigungskurve liefern. Die verhältnismäßig kleine Sättigungsintensität weist auf einen eher langsamen Übergang oder aber sehr effektive Anregung (großer Wirkungsquerschnitt etc.) hin. Ob es sich bei dem linearen Anstieg der Sättigungskurve für hohe Leistungen nicht doch um einen messtechnischen Effekt handelt, konnte noch nicht endgültig geklärt werden. Denkbar wäre allerdings auch eine Anregung aus dem oberen in noch höhere Zustände ("excited state absorption"), die eine wirkliche Sättigung praktisch verhindert. Welche Erkenntnisse liefert das Gesamtspektrum? Interpretiert man die 694nm-Linie in üblicher Weise als ZPL und den langwelligen Ausläufer als vibronisches Band, so deutet der außergewöhnlich schwache phononische Unterbau auf geringe Elektron-Phonon-Kopplung hin, ein typisches Merkmal von Übergangsmetallionen auf Zwischengitterplätzen. Nun besitzen Übergangsmetallionen in Kristallgittern noch eine weitere charakteristische Eigenschaft. Optische Übergänge finden häufig innerhalb der nicht abgeschlossenen 3d-Schale statt, die nach außen durch das 4s-Orbital abgeschirmt wird. Die Auswahlregel $\Delta L = \pm 1$ verbietet aber solche Übergänge, was i. d. R. lange Lebensdauern der angeregten Zustände zur Folge hat. So auch im vorliegenden Fall: Iakoubovskii ermittelte über gepulste Anregung eine Zerfallszeit von 7 ms bei 300 K und 10 ms bei 77 K. Dies würde als maximale Emissionsrate eines einzelnen Zentrums etwa 140 s^{-1} ergeben, ein auch ohne Berücksichtigung der Aufsammeleffizienz von 10^{-4} viel zu geringer Wert. Es stellt sich also die Frage, wie die beobachtete hohe Lumineszenzintensität zustande kommt (vorausgesetzt natürlich, es handelt sich bei dem fraglichen Defekt tatsächlich um den in [50] beschriebenen). Iakoubovskii selbst erklärt die auch in seinen Untersuchungen trotz einer geschätzten Konzentration der Fe-Defekte von wenigen ppb sehr markante Linie mit möglichen Wechselwirkungen in höheren angeregten Zuständen, die den Übergang schließlich doch erlauben könnten. Aus Sicht der Einzeldefektspektroskopie scheint andererseits

auch denkbar, dass sich während des Kristallwachstums clusterartige Einschlüsse gleicher Lumineszenzverursacher wie z. B. Eisen gebildet haben. Diese würden dann auf kleinem Raum gemeinsam, aber unabhängig voneinander emittieren. Eine solche Hypothese stünde im Einklang mit mehreren HBT-Messungen auf 694nm-Zentren, die keinerlei Anzeichen für antibunching lieferten. Wie jedoch eine kurze Rechnung zeigt, wären Agglomerate von mehr als 10^6 Fe-Atomen auf einem Raum von etwa $1 \mu\text{m}$ nötig, um auf diese Weise die beobachteten Zählraten zu erzeugen - ein unwahrscheinlicher, wenn auch nicht völlig ausgeschlossener Fall. Sollten jedoch tatsächlich effektive Spin-Bahn-Kopplungen o. ä. in der Elektronenkonfiguration besagten Übergang zu einem erlaubten machen, könnten eventuell auch sehr kurze Zerfallszeiten von 1 ns und weniger auftreten. In diesem Fall wären die detektierten 694nm-Zentren fast ideale Einzelphotonenquellen, die für die gegenwärtige HBT-Elektronik schlicht zu schnell sind (vgl. Abschnitt 3.3.2). Hier sollten auf jeden Fall weitere Nachforschungen Klarheit schaffen.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Ausblick

Zielsetzung der vorliegenden Diplomarbeit war es, das Komplementaritätsprinzip als fundamentales Gesetz der Quantenmechanik mittels einer festkörperbasierten Einzelphotonenquelle zu demonstrieren und diese im Hinblick auf einen späteren Einsatz in der Quantenkryptographie weiterzuentwickeln.

Die Hauptkomponenten des Grundlagenexperiments zur Komplementarität bestehen aus einer Einzelphotonenquelle sowie einem Mach-Zehnder-Interferometer. Die Einzelphotonen wurden dabei von einer neuartigen, außerordentlich stabilen und einfach zu bedienenden Quelle zur Verfügung gestellt, die aus einem isolierten Stickstoff-Fehlstellen-Defekt im Diamant besteht und im konfokalen Mikroskop bei Raumtemperatur Zählraten von einigen 1000 s^{-1} ermöglicht.

Zur Demonstration des Komplementaritätsprinzips im Sinn des Welle-Teilchen-Dualismus wurde ein kompaktes Mach-Zehnder-Interferometer aufgebaut. Bei optimaler Justage konnte ein Interferenzkontrast von bis zu 97.5% und bei Bedarf eine tagelange Phasenstabilität erzielt werden. Um die Interferenz von Einzelphotonen aufzuzeigen und so den Welle-Teilchen-Dualismus zu veranschaulichen, war zunächst eine einfache Hanbury-Brown-Twiss-Anordnung zu realisieren, indem die Detektoren direkt hinter dem ersten Strahlteiler in den beiden Interferometerarmen platziert wurden. Die Korrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ zeigt unter Berücksichtigung der Hintergrundzählraten perfektes „photon antibunching“ und weist die benutzte Lichtquelle als echten Einzelphotonen-Emitter aus. Eine derartige Messung nimmt ferner auf den Teilchencharakter des Lichts Bezug und liefert Welcher-Weg-Information, wodurch die Möglichkeit zur Interferenz ausgeschlossen wird. Diese Messung zeigt, dass wir ein einzelnes Photon nur in einem der beiden Arme des Interferometers detektieren werden. Abgesehen von Untergrundfehlern wird nie ein Photon in beiden Armen detektiert. Trotzdem werden wir, wenn die beiden Arme am zweiten Strahlteiler des MZI überlagert werden, unter Verzicht auf Welcher-Weg-Information Interferenzen beobachten.

Der Aufbau gestattete die fast vollständige Aufnahme der Fouriertransformierten des Spektrums mit einem maximalen Interferenzkontrast von ca. 96%. Mittels eines zusätzlichen Hanbury-Brown-Twiss-Experiments in der gleichen Anordnung wurde der Einzelphotonencharakter des interferierenden Lichts demonstriert. Die Interferenz einzelner Photonen als Beispiel für das Komplementaritätsprinzip kann somit als bestätigt gelten.

Im zweiten Teil der Diplomarbeit wurden Wege zu einer Verbesserung der Einzelphotonenquelle im Hinblick auf einen künftigen Einsatz als Kryptographie-Sender aufzuzeigen. Die Arbeiten konzentrierten sich auf die Suche nach einem passenden neuen Punktdefekt als Quantenemitter, der u. a. ein schmaleres Spektrum als das bisher verwendete NV-Zentrum aufweist. Anhand spektroskopischer Messungen an CVD-Diamantproben konnte das durch Silizium-Verunreinigungen hervorgerufene SiV-Zentrum als vielversprechender Kandidat identifiziert werden. Das Spektrum dieses Defekts weist auch bei 300 K eine scharfe Null-Phononen-Linie gegenüber einer sehr geringen Schwingungsverbreiterung auf. Dies ergaben Messungen in Übereinstimmung mit Literaturangaben. Es war aber nicht möglich, einzelne Zentren mittels des konfokalen Mikroskops zu adressieren. Abschätzungen ergaben Defektdichten in von über 10^{12} cm^{-3} . Die weiteren Schritte zur Erzeugung einzeln detektierbarer SiV-Zentren bestehen deshalb darin, mittels geeigneter Herstellungsverfahren die Dichte der störenden Verunreinigungen im Kristall zu senken und gleichzeitig für eine kontrollierbare Si-Dichte zu sorgen. Ansätze hierzu wurden in der vorliegenden Arbeit entwickelt und sollen demnächst ausgebaut werden. Ein anderer Aspekt in diesem Teil befasste sich mit dem 694nm-Zentrum, das vereinzelt in 1b-Diamantproben als isolierter Defekt zu beobachten war und evtl. auch als Einzelphoton-Emitter in Frage kommt. Anhand der gemessenen Feinstruktur der scharfen Lumineszenzlinie konnte der Defekt als das Fe-Zentrum identifiziert werden, von dem kürzlich andere Forschergruppen berichteten. Die extreme Leuchtkraft des Defekts sowie die Tatsache, dass kein "antibunching"-Effekt im Hanbury-Brown-Twiss-Experiment zu beobachten war, lässt auf außergewöhnliche atomare Verhältnisse in dem Defekt schließen, die weiterer Untersuchungen bedürfen.

Sobald dann einzelne Zentren passender physikalischer Eigenschaften vorliegen, wird man daran gehen, die Quelle durch geschickte technische Implementierung praxistauglich zu machen. Um die Photonenaussendung zeitlich zu kontrollieren, wird man zweckmäßig zur gepulsten Anregung des Quantenemitters übergehen. Zusätzlich bietet es sich an, der Emission durch Verwendung von Mikroresonatoren eine räumliche Vorzugsrichtung zu geben und damit die Aufsammelleffizienz zu verbessern. Die damit verbundenen Fragestellungen sind z. T. Gegenstand der aktuellen Forschung und versprechen interessante Einblicke in die Grundlagen der Quantenoptik.

Literaturverzeichnis

- [1] H. J. Kimble, M. Dagenais, und L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **39**, 691 (1977).
- [2] M. Dagenais und L. Mandel, Phys. Rev. A **18**, 2217 (1978).
- [3] F. Diedrich und H. Walther, Phys. Rev. Lett. **58**, 203 (1987).
- [4] J. Volz, Diplomarbeit, Univ. München (2000).
- [5] M. Schubert, I. Siemers, R. Blatt, W. Neuhauser, und P. E. Toschek, Phys. Rev. Lett. **68**, 3016 (1992).
- [6] L. Fleury, J. -M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, und U. P. Wild, Phys. Rev. Lett. **84**, 1148 (2000).
- [7] W. Weisskopf und E. Wigner, Z. f. Phys. **63**, 54 (1930); **65**, 18 (1930).
- [8] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, und E. Hu, Phys. Rev. B **63**, 121312(R) (2001).
- [9] P. Michler und C. Becher, Phys. Bl. **57**, 55 (2001).
- [10] S. Mayer, Zulassungsarbeit für das Lehramt an Gymnasien, Univ. München (2000)
- [11] Ch. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, und H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000).
- [12] H. J. Carmichael und D. F. Walls, J. Phys. B **9**, L43 (1976), J. Phys. B **9**, 1199 (1976).
- [13] Brown, R. Hanbury, und R. Q. Twiss, Nature **177**, 27 (1956), Nature **178**, 1046 (1956).
- [14] C. H. Bennett und G. Brassard, Proc. IEEE Int. Conf. on Computers, Systems and Signal Processing, Bangalore, India, p. 175-179 (1984).

- [15] P. Zarda, Diplomarbeit, Univ. Innsbruck (1999).
- [16] H. Paul, *Photonen*, Verlag B. G. Teubner, Stuttgart/Leipzig, 2. Auflage 1999.
- [17] M. O. Scully und M. Suhail Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press 1997.
- [18] N. Bohr, Phys. Rev. **48**, 696 (1935).
- [19] M. O. Scully, B. G. Englert, und H. Walther, Nature **351**, 111 (1991).
- [20] P. Grangier, G. Roger, und A. Aspect, Europhys. Lett. **1**, 173 (1986).
- [21] M. Weber, Diplomarbeit, Univ. München (2000).
- [22] Ch. Kurtsiefer, P. Zarda, S. Mayer, und H. Weinfurter, submitted to J. Mod. Opt. (2001).
- [23] A. T. Collins, M. F. Thomaz, und M. I. B. Jorge, J. Phys. C **16**, 2177 (1983).
- [24] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J. P. Poizat, und P. Grangier, Phys. Rev. A **64**, 061802(R) (2001).
- [25] A. Paoletti und A. Tucciarone (Ed.), *The Physics of Diamond*, IOS Press, Amsterdam, 1997.
- [26] P. W. May, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A **358**, 473 (2000).
- [27] J. E. Field (Ed.), *The Properties of Natural and Synthetic Diamond*, Academic Press, London, 1992 (2. Auflage 1997).
- [28] H. Sternschulte, Dissertation, Shaker Verlag, Aachen (2000).
- [29] M. Schreck, Universität Augsburg, private Mitteilung.
- [30] A. M. Zaitsev, V. S. Vavilov, und A. A. Gippius, Sov. Phys. Lebedev Inst. Rep. **10**, 15 (1981).
- [31] A. T. Collins, M. Kamo, und Y. Sato, J. Mater. Res. **5**, 2507 (1990).
- [32] T. Feng und B. D. Schwartz, J. Appl. Phys. **73**, 1415 (1993).
- [33] C. D. Clark, H. Kanda, I. Kiflawi, und G. Sittas, Phys. Rev. B, **51**, 16681 (1995).

- [34] S. W. Brown und S. C. Rand, *J. Appl. Phys.* **78**, 4069 (1995).
- [35] J. P. Goss, R. Jones, S. J. Breuer, P. R. Briddon, und S. Öberg, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3041 (1996).
- [36] J. Ruan, W. J. Choyke, und W. D. Partlow, *Appl. Phys. Lett.* **58**, 295 (1991).
- [37] M. R. Correia, T. Monteiro, E. Pereira, und L. C. Costa, *J. Appl. Phys.* **84**, 2207 (1998).
- [38] H. Sternschulte, K. Thonke, R. Sauer, P. C. Münzinger, und P. Michler, *Phys. Rev. B* **50**, 14554 (1994).
- [39] A. V. Turukhin, C. H. Liu, A. A. Gorokhovsky, R. R. Alfano, und W. Phillips, *Phys. Rev. B* **54**, 16448 (1996).
- [40] A. A. Gorokhovsky, A. V. Turukhin, R. R. Alfano, und W. Phillips, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 43 (1995).
- [41] K. Iakoubovskii, G. J. Adriaenssens, N. N. Dogadkin, und A. A. Shiryaev, *Diam. Relat. Mater.* **10**, 18 (2001).
- [42] P. Koidl, Inst. für Angew. Festkörperphysik, Freiburg, private Mitteilung.
- [43] Y. K. Vohra, C. A. Vanderborgh, S. Desgreniers, und A. L. Ruoff, *Phys. Rev. B* **39**, 5464.
- [44] J. W. Steeds, A. Gilmore, K. M. Bussmann, J. E. Butler, und P. Koidl, *Diam. Relat. Mater.* **8**, 996 (1999).
- [45] G. Sittas, H. Kanda, I. Kiflawi, und P. M. Spear, *Diam. Relat. Mater.* **5**, 866 (1996).
- [46] I. Kiflawi, G. Sittas, H. Kanda, und D. Fisher, *Diam. Relat. Mater.* **6**, 146 (1997).
- [47] J. F. Prins und T. E. Derry, *NIM B*, 364 (2000).
- [48] J. F. Prins, *Diam. Relat. Mater.* **10**, 1756, (2001).
- [49] K. Iakoubovskii, PhD thesis, Kath. Univ. Leuven (2000)
- [50] K. Iakoubovskii, Univ. Leuven, private Mitteilung

Danksagung

Zum Schluss möchte ich allen danken, die zum Gelingen beigetragen haben. An erster Stelle richtet sich dieser Dank an Prof. Harald Weinfurter, der mir diese Arbeit (nebst einer ausgesprochen lohnenden Konferenz unter südlicher Sonne...) ermöglicht hat und dessen Ideenreichtum und experimentelles Geschick mir insbesondere in der Endstadium der Arbeit so manches Problem bewältigen half.

Besonders danke ich auch Dr. Christian Kurtsiefer für die vielen fachlichen Hinweise und den ansteckenden Optimismus, den er auch im ärgsten Krypto-Stress nicht zu verlieren scheint. Ferner Patrick Zarda, der mich in dieses Thema einführte und von dessen bemerkenswertem technischen Verständnis ich des öfteren profitieren konnte.

Von den übrigen Mitgliedern unserer Gruppe, die hier nicht alle namentlich genannt werden können, möchte ich Jürgen Volz hervorheben. Für die anregenden, teils spätabendlichen Diskussionen physikalischen und manchmal nichtphysikalischen Inhalts gibt es sicher noch einen Extra-Kuchen.

Außerhalb des universitären Elfenbeinturms bin ich in einerseits Franz Tischler für die schöne Zeit in der Pfarrjugend zu besonderem Dank verpflichtet, die mir gerade in strapaziösen Phasen ein wichtiger Ausgleich zum Studium war.

Andererseits natürlich meinen Eltern, die mir durch ihre finanzielle und ideelle Unterstützung dieses Studium erst ermöglicht haben.

Auf der letzten Seite sind Aufnahmen zum Versuchsaufbau dargestellt. Das obere Bild zeigt das konfokale Mikroskop, unten das Mach-Zehnder-Interferometer für die Einzelphotoneninterferometrie.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet zu haben.

München, den 21. Dezember 2001