

---

# Spektroskopische Tieftemperaturuntersuchungen von Siliziumfehlstellen in Diamant

Lukas Karl Ruprecht Worthmann

---



München 2015



---

# **Spektroskopische Tieftemperaturuntersuchungen von Siliziumfehlstellen in Diamant**

**Lukas Karl Ruprecht Worthmann**

---

Diplomarbeit  
an der Fakultät für Physik  
der Ludwig-Maximilians-Universität  
München

vorgelegt von  
Lukas Karl Ruprecht Worthmann  
aus München

München, den 1.12.2015

Erstgutachter: Dr. habil. Markus Weber  
Zweitgutachter: Prof. Dr. Alexander Högele

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Farbzentren in Diamant</b>	<b>5</b>
2.1	Allgemeine Eigenschaften von Diamant . . . . .	5
2.1.1	Synthese künstlicher Diamanten . . . . .	7
2.2	Gitterdefekte und Klassifizierung . . . . .	8
2.3	Auftreten des Silizium-Fehlstellen-Farbzentrums . . . . .	9
<b>3</b>	<b>Physikalische Beschreibung des Silizium-Fehlstellen-Farbzentrums</b>	<b>11</b>
3.1	Molekülstruktur . . . . .	11
3.1.1	Gitteranordnung . . . . .	11
3.1.2	Elektrische Konfiguration . . . . .	12
3.2	Spektrale Eigenschaften . . . . .	13
3.2.1	Energieschema . . . . .	13
3.2.2	Spektrum der ZPL . . . . .	13
3.2.3	Phononen . . . . .	15
3.2.4	Optische Anregung . . . . .	17
3.2.5	Nanodiamanten . . . . .	17
3.2.6	Einzelphotonenquellen . . . . .	18
<b>4</b>	<b>Experimentelles Setup</b>	<b>21</b>
4.1	Kryostat . . . . .	21
4.2	Konfokalmikroskop . . . . .	24
4.2.1	Prinzip . . . . .	24
4.2.2	Aufbau . . . . .	25
4.3	Cavity . . . . .	30
4.4	Detektoren . . . . .	31
4.4.1	Gitterspektrometer . . . . .	31
4.4.2	Monochromator . . . . .	31
4.4.3	APDs . . . . .	32

---

<b>5</b>	<b>Spektroskopische Tieftemperaturuntersuchungen</b>	<b>35</b>
5.1	Leistungsabhängige Untersuchung . . . . .	35
5.2	Polarisationsabhängige Untersuchung . . . . .	39
5.3	Spektral aufgelöste Messungen . . . . .	39
5.4	Zeitaufgelöste Messung . . . . .	45
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>53</b>
6.1	Zusammenfassung . . . . .	53
6.2	Ausblick . . . . .	54
<b>A</b>	<b>Fabry-Pérot-Resonator</b>	<b>57</b>
<b>B</b>	<b>Monochromator</b>	<b>63</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>69</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

*„There is no authority who decides what is a good idea“*  
— Richard Feynman

Grundlage für die Quanteninformationstechnik ist die Idee, die Quanteneigenschaften und Gesetze der Quantenmechanik für Informationsverarbeitung und Datenübermittlung zu verwenden [1]. Einer der grundlegenden Unterschiede zur konventionellen Informatik ist die Verwendung von *Qubits* anstelle von Bits. Hierin liegt bereits ein elementarer Unterschied zwischen den beiden sonst eng verwandten Wissenschaftsgebieten. Ein Quantenbit kann, im Gegensatz zum klassischen Bit, welches nur die Zustände 0 und 1 kennt, in einem beliebigem Superpositionszustand aus 0 und 1 vorliegen [2]. Daraus ergeben sich vielfältige Möglichkeiten, unter Ausnutzung der Gesetze der Quantenmechanik völlig neue und andere Lösungsansätze für bekannte Problemstellungen zu entwickeln. Um jedoch überhaupt diese neuartigen Systeme nutzen zu können, müssen sie erst realisiert werden. Gegenwärtig werden äußerst aufwendig einzelne, isolierte Quantensysteme zur Darstellung einzelner Qubits verwendet. Und während stetig neue Erfolge bei der Erforschung neuer und verbesserter Quantensysteme berichtet werden, so scheint die alltägliche Verwendung solcher Systeme noch in ferner Zukunft [3].

Dagegen sind einzelne Teilbereiche der Quanteninformatik deutlich weiter als die Öffentlichkeit wirksam, eher populärwissenschaftlich, Berichte zu diesem Thema vermuten lassen [4]. Es existieren nicht nur erste Konzepte zur Verwendungen von Quanteneffekten in der Kryptographie, es sind bereits Implementierung des Quantenschlüsseltauschprotokolls BB84 kommerziell<sup>1</sup> erhältlich und finden weltweit Einsatz. Hierbei ist das BB84-Protokoll jedoch nur ein Baustein eines sonst konventionellen Kryptographiesystems.

In der Quanteninformationstechnik werden also bereits Qubits erfolgreich verwendet, woraus werden jedoch diese Qubits geformt? Welche physikalischen Systeme sind zur Verwendung als Quantenbit geeignet? Hier gibt es verschiedenste Ansätze, gemein ist allen, dass sie mindestens ein quantenmechanisches Zwei-Zustand-System benötigen. Als Beispiele seien hier der Spin eines Elektrons oder Atomkerns genannt oder auch die Polarisation

---

<sup>1</sup><http://magiqtech.com>

eines Photons. Photonen, wie sie zum Beispiel in BB84-Implementierungen eingesetzt werden, bieten den Vorteil, dass sie einfach über längere Strecken übertragen werden können. Schwieriger dagegen ist das definierte Erzeugen einzelner Photonen, welche jeweils ein Qubit repräsentieren [5]. Zwar sind statistische Verfahren, welche beispielsweise durch stark abgeschwächte Laserlichtquellen im Schnitt ein Photon erzeugen [5], gängige Praxis, aber zur deterministischen Erzeugung einzelner Photonen nicht geeignet. Dafür wird wiederum ein quantenmechanisches Zwei-Zustands-System benötigt, welches kontrolliert einzelne Photonen erzeugen kann.

Ein solches Zwei-Zustand-System kann durch externe Anregung aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand übergehen, aus welchem es dann durch spontane Emission eines Photons wieder in den Grundzustand relaxieren kann. Solange sich das System in einem angeregten Zustand befindet, kann es nicht weiter angeregt werden. Das Zeitintervall, in welchem sich das System durchschnittlich im angeregten Zustand befindet, bezeichnet die Lebensdauer des Systems. Wird ein solches System nun kontinuierlich angeregt, so emittiert es regelmäßig Photonen, welche aber durchschnittlich durch die Lebensdauer des Systems getrennt sind. Diesen Effekt, welcher nur mit Hilfe der Quantenmechanik hinreichend beschrieben werden kann, wird als Anti-Bunching bezeichnet und ist durch nichtklassische, subpoissonische Verteilung der Photonen gekennzeichnet.

Die Möglichkeit, gezielt einzelne Photonen zu erzeugen, ist ein wichtiger Baustein nicht nur für die Quanteninformationstechnologie, sondern auch für andere Felder der Physik. In der Quantenelektrodynamik, welche die Wechselwirkungen elektrisch geladener Teilchen und Photonen in einer Quantenfeldtheorie beschreibt, bieten einzelne Photonen die Möglichkeit, grundlegende Experimente durchzuführen, welche oftmals sogar auf Mikrochips stattfinden [6].

Zwei-Niveau-Systeme versprechen also neue Einblicke in die Physik und bergen Potential für neuartige Anwendungen bekannter Systeme. Die Realisierung einzelner, adressierbarer Zwei-Niveau-Systemen begann mittels einzelner Atome [7] und Ionen [8], die in Fallen gefangen wurden und mit Hilfe von Laserlichtquellen sowohl optisch gekühlt als auch angeregt wurden. Später wurden auch organische Farbstoffmoleküle [9][10] und Halbleiterquantenpunkte [11][12] zur Realisierung solcher Systeme verwendet. Gemein ist all diesen Methoden jedoch der hohe experimentelle Aufwand in Erstellung und/oder Erhaltung dieser Systeme. Einzelne Atome und Ionen können nur in Vakuum und bei kryogenen Temperaturen für längere Zeiträume gehalten werden. Farbstoffmoleküle verbleichen über Zeit und verlieren ihre Fluoreszenzeigenschaften. Quantenpunkte sind zwar langlebiger als Farbstoffe, bedürfen jedoch eines aufwändigen Herstellungsprozesses und sind nur bei kryogenen Temperaturen verwendbar [5].

Im Gegensatz dazu stehen Farbzentren in Kristallgittern, welche durch die Einbindung in einen Festkörperkristall auch ohne aufwändige Isolation von der Umwelt bei Raumtemperatur bestehen können. Ganz allgemein sind Farbzentren Gitterfehler, bei denen ein oder mehrere Gitteratome fehlen oder durch ein anderes Element ersetzt sind. Ihr Name rührt von der Tatsache, dass sie Licht im sichtbaren Bereich absorbieren und dadurch dem Kristall eine Farbe verleihen. Physikalisch verhalten sich Farbzentren wie ein Zwei-Zustands-System und bieten sich daher als möglich Einzelphotonenquelle an. Allein in Diamant sind

inzwischen über 500 verschiedene Farbzentren bekannt [13]. Die ersten Experimente mit einzelnen Farbzentren in Diamant wurden mit Stickstoff-Farbzentren durchgeführt [14], welches sich aufgrund seiner einfachen Herstellung und Verfügbarkeit und überragenden Spineigenschaften bisher als prominentestes Farbzentrum in Diamant durchgesetzt hat [15]. Erste Versuche eine Einzelphotonenquelle auf Basis des  $NV^-$ -Farbzentrens kommerziell anzubieten waren bisher jedoch nicht langfristig erfolgreich. Die Vorteile von Farbzentren in Diamant im Vergleich zu anderen Zwei-Niveau-Quantensystemen sind also hauptsächlich im reduzierten experimentellen Aufwand zu sehen.

Trotz der einfachen experimentellen Handhabung haben aber auch  $NV^-$ -Zentren Nachteile, welche sich nicht beliebig ausgleichen lassen. So vereinfacht sich zwar die Handhabung durch die Implementation des Systems in den Diamantkristall, doch daraus ergibt sich zugleich auch ein großes Problem: Das Zwei-Niveau-System koppelt an die benachbarten Gitterstrukturen des Diamants. Dies führt zur Wechselwirkungen zwischen dem optischen Übergang des Farbzentrens mit den Gitterschwingungsmoden des Kristallgitters. Dadurch kann sich die eigentlich scharf definierte Übergangsfrequenz des Farbzentrens stark verbreitern. Bei dem bisher genannten Stickstoff-Fehlstellenzentrum ist bei Raumtemperatur etwa 95 % der Lichtemission durch Wechselwirkung mit dem Gitter beeinflusst [16]. Als weiteres Problem hat sich gezeigt, dass sich die Energiedifferenz des Zwei-Niveau-Systems über lange Zeitperioden verändert, was sich auf sich verändernde Ladungsverteilung im Kristall zurückführen lässt. Zudem zeigen Nanodiamanten mit  $NV^-$ -Zentren teilweise ein Blinken, weshalb sie sich als langzeitstabile Einzelphotonenquellen weniger eignen [16].

Die starke Verbreiterung des Übergangs sowie die zeitliche Instabilität des  $NV^-$ -Zentrums reduzieren daher seine Nützlichkeit für Anwendungen in der Quanteninformationstechnik, in denen oft ununterscheidbare Einzelphotonquellen benötigt werden. Auch aus diesen Gründen richtet sich der Augenmerk in der Forschung verstärkt auf ein weiteres Farbzentrum in Diamant, welches diese Nachteile nicht aufweist. Das Silizium-Fehlstellen-Zentrum (eng. *silicon-vacancy-center*, SiV-Zentrum) lässt sich bereits während der Herstellung künstlicher Diamanten erzeugen [17]. Zudem koppelt das Zwei-Niveau-System nur geringfügig an die umliegenden Gitterschwingungen, was einen Großteil der Lichtemission in einen engen Wellenlängenbereich ergibt [17]. Auch sind die Energieniveaus im SiV-Zentrum konstant über lange Zeiträume und zeigen keine spektralen Drift [18]. Damit kann sich das SiV-Zentrum als guter Kandidat einer stabilen, einfach handhabbaren und relativ günstig herzustellenden Einzelphotonenquelle positionieren.

Als problematisch für alle Farbzentren in Diamant stellt sich jedoch der hohe Brechungsindex des Materials heraus. Die dadurch schon für kleine Winkel auftretende Totalreflexion und starke Lichtbrechung an den Grenzflächen reduziert die Emissionseffizienz von Farbzentren in makroskopischen Diamantstrukturen. Aber auch dies Problem lässt sich umgehen. Durch den Einsatz von Diamantnanokristallen, die Größen unterhalb der Emissionswellenlänge der Farbzentren aufweisen, wird Totalreflexion effektiv vermieden [19]. Die Verwendung von Nanodiamanten ist weiterhin hilfreich, da sie die exakte Positionierung der Farbzentren möglich macht. Während in der Herstellung künstlichen Diamants mit Farbzentren die Farbzentren statistisch verteilt sind, lassen sich Nanodiamanten mit Nanomanipulatoren positionieren. Dies ermöglicht effiziente Kopplung von Farbzentren an

Wellenleiterstrukturen [20] wie Glasfasern und dielektrische Strukturen. Nanodiamanten versprechen also interessante Möglichkeiten im Bereich der Quanteninformationstechnik.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden spektroskopische Untersuchungen an Nanodiamanten mit Silizium-Fehlstellen-Zentren unter kryogenen Bedingungen durchgeführt. Dabei wurden sowohl statische als auch dynamische Eigenschaften der Fluoreszenz untersucht. Im vorliegenden Text werden zuerst Farbzentren in Diamant allgemein und dann auf Silizium-Fehlstellen im Besonderen eingegangen. Dabei wird auf Vorkommen und Herstellung von Diamant und Fehlstellen unterschiedlicher Klassifikationen dargestellt. Anschließend wird die Struktur des Silizium-Fehlstellen-Zentrums erläutert sowie der Stand der Forschung dargelegt. Weiter wird auf die spektralen Eigenschaften eingegangen und dabei die Besonderheiten von Nanodiamanten und Einzelphotonenquellen ausgearbeitet. Im Anschluss an die theoretische Betrachtung wird das verwendete experimentelle Setup ausführlich erläutert, wobei besonders die im Rahmen der Arbeit neu in den Aufbau integrierten Komponenten erklärt werden. Dann werden die Ergebnisse der Messungen vorgestellt, die sich in leistungs- und polarisationsabhängigen Untersuchungen mit und ohne Berücksichtigung der Fluoreszenzwellenlänge sowie Messungen mit resonanter Anregung sowie der Fluoreszenzlebenszeit ergeben haben. Im Ausblick richtet sich das Augenmerk sowohl auf mögliche Änderungen am experimentellen Setup als auch auf zukünftige Anwendungsmöglichkeiten von Farbzentren in Nanodiamant in der Quanteninformationstechnologie.

# Kapitel 2

## Farbzentren in Diamant

Diamant, aus dem Griechischen von dia- (durch) und adamantos (unbezwingbar), ist eine Kohlenstoffmodifikation mit vielen extremen Eigenschaften. Er ist das härteste natürlich vorkommende Material, hat eine hohe thermische Leitfähigkeit und ist ein elektrischer Isolator [21]. Natürlicher Diamant ist der Menschheit schon seit vielen Jahrtausenden bekannt, jedoch erst durch technische Herstellung in den 50er Jahren erlangte Diamant seine heutige Bedeutung in Industrie und Forschung. Einsatz findet er in vielen Bereichen, als Verschleißschutz auf Werkzeugen, als elektrischer Isolator mit sehr guter Wärmeleitfähigkeit, als Schleifmittel oder auch als Tonabnehmer im Schallplattenspieler. Im weiteren Verlauf der Arbeit soll hauptsächlich auf die optischen Eigenschaften von Diamant eingegangen werden. Zunächst jedoch werden grundlegende Eigenschaften betrachtet und auf die künstliche Herstellung von Diamant eingegangen. Zuletzt werden dann noch zwei Arten im Laufe der Arbeit untersuchter Farbzentren behandelt.

### 2.1 Allgemeine Eigenschaften von Diamant

Diamant ist, wie bereits erwähnt, eine Modifikation des Kohlenstoff. Seine räumliche Struktur ist die zweier kubisch flächenzentrierter Gitter (*fcc*, *face-centered-cubic*), wobei eines der Gitter um  $1/4$  der Raumdiagonale verschoben ist (Basis:  $\{(0, 0, 0), (\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})\}$ ). Die Gitterkonstante beträgt  $a = 3.5668 \text{ \AA}$ . Bemerkenswert ist hier auch noch die geringe Raumnutzung der Diamantstruktur. Nur etwa 34% des Raumes sind mit Atomen besetzt, da nur vier der acht vorhandenen Tetraederlücken des ersten *fcc*-Gitters durch das Zweite besetzt sind. In der kubisch dichtesten Kugelpackung hingegen sind 74% des Raums durch Atome besetzt [22]. Die Kohlenstoffatome im Diamantgitter liegen  $sp^3$ -hybridisiert vor ( $1s^2 2[sp^3]^4$ ). Jedes ist also mit 4 Nachbaratomen kovalent gebunden. Der Öffnungswinkel dieser Bindungsorbitale liegt dabei bei etwa  $109^\circ 28'$ . Aus der hohen Bindungsenergie von 285,5 eV ergibt sich die sehr große Härte von Diamant mit einem Wert von 10 auf der Mohs-Skala [23]. Die große Bandlücke von  $E_g = 5,54 \text{ eV}$  führt zu einer breiten optischen Transparenz vom nahen UV bis ins Infrarote [24]. Auch die vollständige Hybridisierung der  $2s$  und  $2p$ -Orbitale führt zu vielen der charakteristischen Eigenschaften von Diamant.

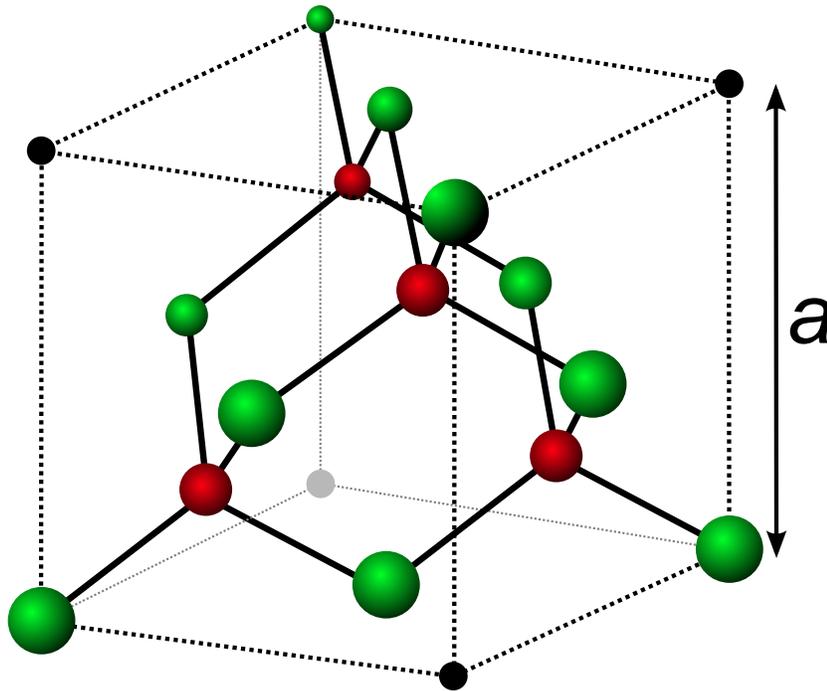


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Diamanteinheit zelle. Grüne und rote Kugeln stellen jeweils ein mit Kohlenstoffatomen besetztes fcc-Gitter dar. Das rote Gitter ist um  $1/4$  der Raumdiagonalen versetzt. Die  $sp^3$ -hybridisierten Bindungen sind durch schwarze Linien angedeutet. Jeder rote Gitterpunkt bildet mit seinen vier nächsten Nachbarn ein regelmäßiges Tetraeder.

Mangels Valenzelektronen isoliert er elektrisch, leitet jedoch Wärme sehr gut. Durch die starren Bindungen und großen Abstände der Atome und ergeben sich große freie Weglängen für Phononenmoden im Kristallgitter, welche den Wärmetransport ermöglichen [25]. Bei allen Eigenschaften ist jedoch zu beachten, dass diese durch Verunreinigungen oder gezielte Dotierung des Diamants mit anderen Elementen beeinträchtigt werden können. Das Einbringen von Elementen höherer Hauptgruppen, man spricht auch von n-Dotierung, führen zu freien Elektronen im Kristall, wodurch er Halbleitereigenschaften annimmt. Gitterdefekte führen beispielsweise auch zu verstärkter Phononenstreuung und verstärkt so die in Diamant dominierende, phononische Wärmeleitung [13]. Neben physischen sind auch chemische Eigenschaften von Diamant erwähnenswert. Die vollständig besetzten Orbitale führen zu einem fast inerten Stoff, der nur bei hohen Temperaturen mit Sauerstoff, Fluor und Wasserstoff reagiert. Die Oberfläche von natürlich vorkommendem Diamant ist hydrophob, da sie hauptsächlich durch einzelne Wasserstoff-Atome abgeschlossen ist. Dies lässt sich jedoch durch Behandlung mit Sauerstoffradikalen oder freien Hydroxyl-Gruppen ändern, sodass man den Diamant an die eigenen Bedürfnisse anpassen kann [26].

### 2.1.1 Synthese künstlicher Diamanten

Da natürlicher Diamant sehr selten und damit dementsprechend teuer ist, wird Diamant für technische Zwecke seit 1954 künstlich hergestellt. Hierzu gibt es inzwischen diverse technische Verfahren, die im Folgenden kurz erläutert werden sollen.

#### Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren

Das Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren (HPHT eng. high-pressure-high-temperature) nutzt die höhere thermodynamische Stabilität von Diamant im Vergleich zu Graphit bei extremen Bedingungen. Man benötigt einen Druck von über 13 GPa und Temperaturen über 3000 °C um aus reinem Graphit Diamant zu gewinnen. Bei der großtechnischen Herstellung wird Graphit unter Zugabe eines Katalysators, meist einem geschmolzenen Metall, und Impfkristallen gepresst. Durch die Verwendung eines Katalysators wird die benötigte Energie zum Aufbrechen der C-C-Bindungen deutlich reduziert. Es werden Temperaturen im Bereich von nur noch etwa 1500 °C und 6 GPa benötigt. [27] Diese Bedingungen entsprechen in etwa denen in Tiefen von 150 km unter der Erdoberfläche und bilden damit die Entstehung von natürlichem Diamant nach. Dabei werden jedoch oft auch Teile des Katalysators oder anderer in der Umgebung enthaltenen Elemente in die Kristallstruktur integriert, was für die später diskutierte Anwendung von Nachteil sein kann [28].

Eine verwandte Methode des HPHT-Verfahrens ist die Detonationssynthese. Hierbei wird kohlenstoffreicher Sprengstoff unter sauerstoffarmer Atmosphäre in einem abgeschlossenen Gefäß zur Explosion gebracht. Es entstehen dabei dann winzige Diamantnanopartikel mit einer typischen Größe von circa 5 nm. Diese sind jedoch stark mit Resten des verwendeten Sprengstoffs verunreinigt und weisen eine große Anzahl an Gitterdefekten auf [28].

#### Chemische Gasphasenabscheidung

Eine andere Methode zur Diamantsynthese ist das chemische Gasphasenabscheidungsverfahren (CVD eng. chemical vapour deposition). Hierbei wird ein Kohlenwasserstoffgasgemisch in Plasma übergeführt, aus welchem sich die Kohlenstoffionen auf der Oberfläche des Wachstumssubstrates abscheiden. Graphitartige  $sp^2$ -Bindungen werden wiederum durch die Wasserstoffradikale des Plasmas wieder von der Oberfläche losgeätzt, sodass sich schichtweises Diamantwachstum ergibt. Gängige Parameter dieses Verfahrens sind Substrattemperaturen zwischen 700 und 1000 °C,  $H_2:C_2H_4$  Verhältnisse von 100:1 und Druck zwischen 1 und 25 kPa. Als Plasmaquelle können sowohl Mikrowellenquellen als auch Lichtbögen und Heizdrähte zum Einsatz gebracht werden. [27][29]

Insgesamt ist das CVD-Verfahren technisch einfacher durchführbar und auch der Reinheitsgrad der so gewonnenen Diamanten höher. Weiter lässt sich die Qualität und die Eigenschaften der Diamanten durch geschickte Wahl der Parameter besser variieren. Dafür gewinnt man jedoch durch das CVD-Verfahren geringere Mengen Diamant als mit dem HPHT-Verfahren. [21]

## 2.2 Gitterdefekte und Klassifizierung

Bei Gitterdefekten muss grundsätzlich zwischen Punktdefekten, Liniendefekten und Defekten von höherer Dimension unterscheiden. Punktdefekte sind an einer Stelle im Gitter lokalisiert, Liniendefekte bestehen aus eine Reihe von Punktdefekten. Der Versatz ganzer Gitterebenen zählt zu den höherdimensionalen Gitterfehlern, wie sie zum Beispiel an der Oberfläche eines Diamantkristalls auftreten können.[21]

Für diese Arbeit sind besonders Punktdefekte von Bedeutung, da sie die Farbzentren bilden, die im Weiteren (siehe Kapitel 2 ff.) untersucht wurden. Hierbei ist zu beachten, dass es Fehlstellen (*vacancy*), Substitutionsstellen (engl. *substitution*) und Zwischen-Gitter-Störstellen (engl. *interstitial*) gibt. Weiter gilt es zwischen intrinsischen und extrinsischen Störstellen zu unterscheiden. Intrinsische sind Fehler im reinen Gitter, es kommen also nur Kohlenstoffatome vor, während bei extrinsischen Fehlern Fremdatome Kohlenstoff ersetzen oder zusätzlich vorhanden sind. An Fehlstellen ist ein Platz im Gitter unbesetzt, bei Substitutionsstellen ist ein Kohlenstoffatom durch ein anderes Atom (z.B. B, N, P, Si) ersetzt. Zwischen-Gitterfehler treten großteils nur in Kombination von Fehl- und Substitutionsstellen auf. Je nach Grad der Verunreinigung wird Diamant in verschiedenen Güteklassen eingeordnet. Zur Bestimmung werden die Diamanten zumeist auf ihre optischen Eigenschaften untersucht, aber auch Elektronenspinresonanz- und Ramanspektroskopie können zur Charakterisierung verwendet werden. Ausschlaggebend für die Klassifizierung sind Art und Anzahl der ins Kristallgitter eingebauten Fremdatome:[21]

- Klasse Ia  
Diamanten dieser Klasse enthalten mindestens 500 ppm Stickstoffatome, meist kleinere Anhäufungen in Form von Paaren (Typ A-Zentrum) oder Vierlingen (Typ B-Zentrum). Die meisten natürlich vorkommenden Diamanten gehören zu dieser Klasse. Er zeichnet sich durch starke Absorption im UV-Bereich aus. 98% des natürlich vorkommenden Diamants treten so auf.
- Klasse Ib  
Diamant mit weniger als 500 ppm Stickstoff und nur einzeln auftretenden Fremdatomen zählt man zu dieser Klasse. Weniger als 0,15% des weltweit natürlich auftretenden Diamant gehört zu dieser Kategorie.
- Klasse IIa  
Mit einer N-Konzentration von weniger als 1 ppm findet man etwa 1-2% der weltweit vorkommenden Diamanten. Aber auch die meisten im CVD-Verfahren gewonnenen Diamanten sind von dieser Qualität.
- Klasse IIb  
Wie IIa ist auch IIb nur sehr wenig mit Stickstoff verunreinigt, hat jedoch eine nicht vernachlässigbare (mehr als 1 ppm) Verunreinigung mit Bor. Dies führt zum Entstehen einer p-Dotierung, da ein Elektronen eines benachbarten Kohlenstoffs nicht gebunden werden kann.

## 2.3 Auftreten des Silizium-Fehlstellen-Farbzentrums

Im kommenden Abschnitt werden wir uns auf die Untersuchung des sogenannten Silizium-Fehlstellen-Farbzentrums (SiV eng. silicon vacancy center) beschränken, welches im Laufe der Arbeit untersucht wurde. Am häufigsten findet man SiV-Zentren in via CVD gewachsenem Diamant der Klasse IIa. Dabei entstehen die Farbzentren während des Wachstumsprozesses (in situ). Quellen für das in das Diamantgitter eingebrachte Silizium sind dabei unter anderem der aus ebendiesem bestehende Substratträger, die Quarzglasfenster des Reaktionsgefäßes oder Verunreinigungen im Heizelement [30] [31] [32]. Eine weitere Möglichkeit, SiV-Zentren zu erhalten, besteht in Form der Ionenimplantation. Dabei werden Siliziumionen in einem elektrischen Potential beschleunigt und dann mit Hilfe von Magnetfeldern und elektrischen Multipolen auf die Oberfläche gelenkt und fokussiert. Durch das Aufschlagen von hochenergetischen Ionen werden die  $sp^3$ -Bindungen des Diamantgitters aufgebrochen und das Siliziumion dringt unter die Oberfläche des Diamanten ein. Dabei entstehen entlang des Weges des implantierten Ions Fehlstellen im Gitter, Kohlenstoffatome werden von ihrer Gitterposition entfernt. Die Menge und Eindringtiefe der Siliziumionen lässt sich anhand von Prozessparametern der Implantation steuern. Anschließend ist es üblich, die Gitterfehlstellen durch Ausheizen (eng. annealing) zu heilen. Dies geschieht, indem man die Probe unter Schutzatmosphäre oder in Vakuum auf 700 °C erhitzt. [33] [34] [35] [13]



# Kapitel 3

## Physikalische Beschreibung des Silizium-Fehlstellen-Farbzentrums

In diesem Kapitel soll das gegenwärtig in der Wissenschaftsgemeinde als aktuell geltende Modell der Molekülstruktur eines SiV-Zentrums diskutiert werden. Weiter wird auf die spektralen Eigenschaften eingegangen. Gelegentlich werden Unterschiede oder Ähnlichkeiten zum Stickstoff-Fehlstelle-Farbzentrum (eng. Nitrogen-Vacancy-center NV) aufgezeigt, welches aufgrund seines vermehrten natürlichen Auftretens (siehe Kapitel 2.2) bereits ausführlicher untersucht und beschrieben wurde.

Erste Hinweise auf die Existenz des SiV-Zentrum wurden im Jahr 1980 veröffentlicht [36]. Es wurde Fluoreszenz mit einer Energie von 1,68eV berichtet. Im darauffolgenden Jahr wurde diese Beobachtung bestätigt und die Fluoreszenz auf Silizium zurückgeführt [37].

### 3.1 Molekülstruktur

#### 3.1.1 Gitteranordnung

Genauere Details über den räumlichen Aufbau lieferten dann Untersuchungen an Diamanten welche mittels Ionenimplantation mit Silizium versetzt wurden. Hier zeigte sich die Fluoreszenz erst nach einem folgenden Annealingschritt. Als Erklärung hierfür wird angenommen, dass erst durch das Ausheizen die durch die Ionenimplantation entstandenen Fehlstellen im Gitter bewegen und neben den Siliziumatomen anlagern können [37]. Im Gegensatz dazu geht man bei durch CVD gewachsenem Diamant mit SiV-Fehlstellen davon aus, dass sich das Silizium bereits im Schichtwachstum in das Diamantgitter setzt und die Fehlstellen intrinsisch entstehen. Weitere Schichten überwachsen dann das Silizium und die benachbarten unbesetzten Gitterpunkte und schließen es in das Diamantgitter ein. Für Stickstoff-Fehlstelle-Zentren ist dieser Vorgang bereits belegt [38].

Die exakte räumliche Struktur des SiV-Zentrums war für rund 30 Jahre nicht klar. Erst 1996 wurde sie in der heute verwendeten Form errechnet [39]. Mit Hilfe der Dichtefunk-

tionaltheorie (DFT eng. density functional theory), einer Technik zur Bestimmung des quantenmechanischen Grundzustands eines Vielelektronensystems mit bekannter lokaler Elektronendichte, konnte gezeigt werden, dass das Siliziumatom nicht ein Kohlenstoffatom auf einem Gitterknoten ersetzt und neben einer Fehlstelle sitzt. Diese Konfiguration gilt als instabil. Das Siliziumatom ist stattdessen an einer Position entlang der  $\langle 111 \rangle$ -Achse zwischen zwei Leerstellen positioniert, also auf einem Zwischengitterplatz (vergleiche hierzu Abschnitt 2.2). Die Ergebnisse dieser Untersuchung wurden inzwischen sowohl durch weitere Simulationen [40] [41] als auch experimentell [42] bestätigt.

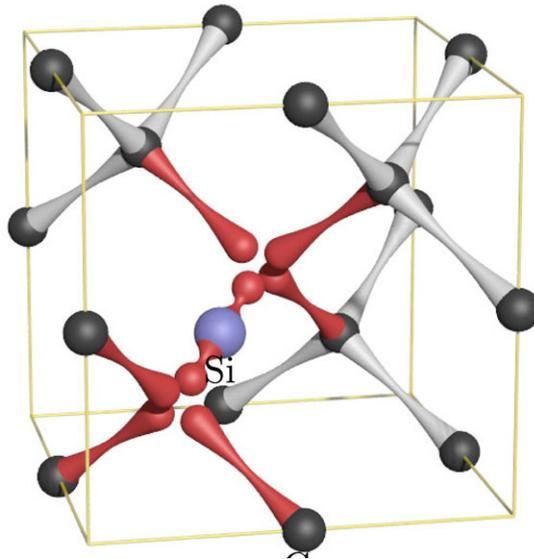


Abbildung 3.1: Räumliche Anordnung eines Silizium-Fehlstellenzentrums im Diamantgitter (aus [42])

### 3.1.2 Elektrische Konfiguration

Nun werfen wir einen Blick auf die Ladungszustände des SiV-Zentrums. Es kann wie NV-Zentren auch zwei Ladungszustände annehmen [43]. Aktuelle Publikationen gehen von einem neutralen  $\text{SiV}^0$ -Zustand bei 1,31 eV (947 nm) und einem negativ geladenen  $\text{SiV}^-$ -Zustand bei 1,68 eV (738 nm) aus, welche sowohl experimentell als auch durch die bereits genannt *ab initio* Rechnungen bestätigt wurden [41] [39]. Das neutrale  $\text{SiV}^0$ -Zentrum ist mit zehn an der Bindung beteiligten Elektronen ein System mit  $S = 1$  Grundzustand [44], das negativ geladene  $\text{SiV}^-$  hingegen hat einen  $S = \frac{1}{2}$  Grundzustand. Im Folgenden widmen wir uns hauptsächlich dem negativen Ladungszustand, weshalb wenn nicht anders erwähnt, mit einem SiV immer das  $\text{SiV}^-$  gemeint ist.

Aufgrund der split-vacancy-Geometrie des Farbzentrum haben die Elektronenorbitale um das Siliziumatom ein punktsymmetrisches Potential ( $D_{3d}$ ), welches eine Entartung der Grund- und angeregten Zustände zur Folge hat [45]. Eine äußerst detaillierte Erläuterung des Einflusses der Symmetrieeigenschaften auf die elektronischen Eigenschaften findet sich

in [46]. Diese Entartung wiederum kann jedoch sowohl durch Jahn-Teller-Effekt als auch Spin-Bahn-Kopplung aufgehoben werden, was im nächsten Abschnitt dargelegt wird. Eine zweite Entartung entsteht durch den  $S = \frac{1}{2}$ -Zustand. Diese Entartung kann durch ein externes magnetisches Feld aufgehoben werden.

## 3.2 Spektrale Eigenschaften

Beginnen werden wir die Betrachtung den spektralen Eigenschaften, dem Energieschema des SiV-Zentrums sowie den daraus folgenden Möglichkeiten zur Anregung und Detektion der Fluoreszenz. Dabei legen wir Unterschiede zwischen Emission aus Festkörpern und atomaren Übergängen dar, welche aus der Interaktion des Farbzentrum mit Gitterschwingungen des Festkörpers entstehen. Weiter wollen wir dann noch das Spektrum ohne Elektron-Phonon-Kopplung, den sogenannten Null-Phonon-Übergang (eng. Zero-Phonon-Line ZPL) betrachten. Bemerkenswert ist hier die Dominanz der Emission eines SiV-Zentrums auf der ZPL mit bis zu 70% der Gesamtemission selbst bei Raumtemperatur.[42].

### 3.2.1 Energieschema

Im Gegensatz zu den ersten spektroskopischen Untersuchungen an SiV-Zentren, welche mit Kathodolumineszenz durchgeführt wurden [37][36], wird in der vorliegenden Arbeit das Farbzentrum optisch angeregt. Zunächst aber wollen wir uns dem Energieniveaumodell des negativen Ladungszustands widmen. Wie in Abbildung 3.2 zu sehen ist, besitzt ein SiV einen Grundzustand  ${}^2E_g$  und einen angeregten Zustand  ${}^2E_e$ , welche durch eine Energie von 1,68 eV (738 nm) voneinander getrennt sind und jeweils einen Spin-Triplet-Zustand bilden. Diese Elektronenspin-Entartung von Grund- und angeregtem Zustand wird teilweise durch Spin-Bahn-Kopplung aufgehoben und sorgt für die Feinstruktur der Zustände mit  $m_s = 0$  und  $m_s = \pm 1$ . Hierbei beträgt die Aufspaltung von  $\lambda_g^{SO} \approx 47$  GHz und von  $\lambda_e^{SO} \approx 258$  GHz. Die Linien A bis D kennzeichnen die vier einzelnen Dipolübergänge zwischen den Zuständen, welche nicht Dipol-verboden sind. Dabei existieren zwei orthogonale Abstrahldipole, welche sich jeweils für zwei der Übergänge verantwortlich zeigen [45]. Die Übergänge A bis D bilden die ZPL des SiV-Zentrums. Die Entartung durch  $S = \frac{1}{2}$  ist hier noch nicht aufgehoben, dazu müsste ein externes Magnetfeld angelegt werden [45].

Zusätzlich ist hier noch ein weiteres Energieniveau  ${}^2A_{1g}$  gezeigt, welches jedoch keinen direkten optischen Übergang in andere Niveaus hat [47]. Vielmehr zerfällt der Zustand zuerst nicht-radiativ in den angeregten Zustand  ${}^2E_e$ , welcher sich dann wiederum strahlend in den Grundzustand relaxieren kann [42].

### 3.2.2 Spektrum der ZPL

In 3.3 ist ein typisches Spektrum der ZPL eines SiV-Zentrums bei kryogenen Temperaturen zu sehen. Aber selbst bei Raumtemperatur zeigt ein SiV eine dominante ZPL bei einer Zentralwellenlänge von 737 nm. Für einzelne SiV-Zentren wurde von Linienbreiten unter 1 nm

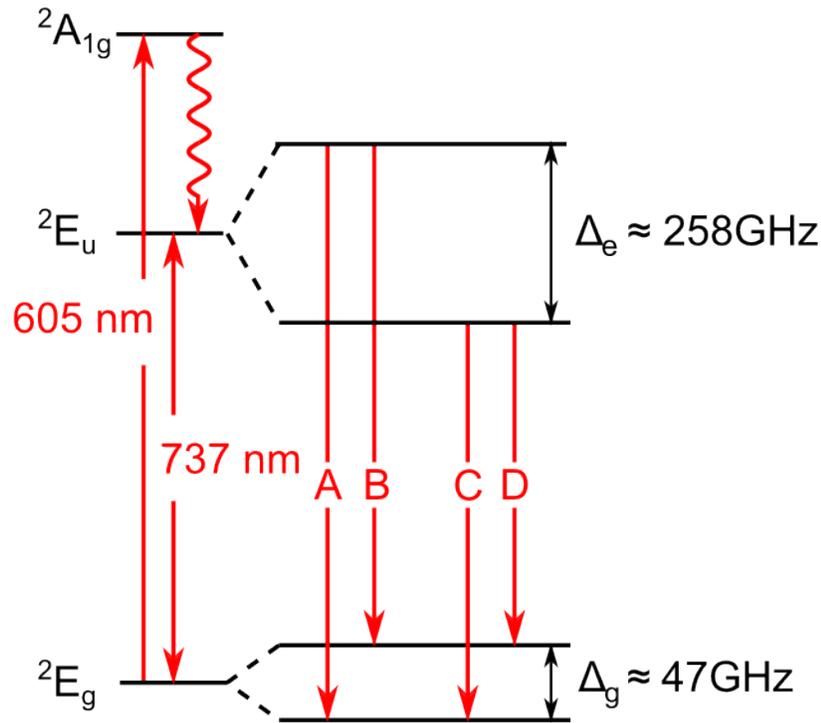


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Energieniveaus eines SiV-Zentrums

berichtet. In kryogener Umgebung geht man aktuell von über 70% der ZPL und damit 50% der Gesamtemission in Linie C aus [42] [48]. Weiter ist von entscheidender Bedeutung, ob man einzelne oder mehrere SiV-Zentren zugleich betrachtet. Wenn man mehrere Zentren in einem Spektrum betrachtet, kann sich die spektrale Struktur der ZPL deutlich ändern. Oft ist das Spektrum so stark verbreitert, dass sich die einzelnen Übergangslinien nicht auflösen lassen und nur eine Linie zu erkennen ist. Auch bei kryogenen Temperaturen kann das noch der Fall sein [24]. Inhomogene Linienverbreiterung kann aufgrund von mechanischen Verspannungen im Diamant auftreten, welcher besonders in polykristallinen Diamantschichten oft auftritt. Die Energieniveaus sind dann durch geänderte Abstände der Atome und der daraus resultierenden veränderten elektrischen Potentiale im Gitter verschoben [24]. In besonders spannungsarmen Diamant wurde aber auch bereits von SiV-Zentren-Ensembles berichtet, die dieses Verbreiterungsverhalten nicht zeigen [48]. Abbildung 3.3 zeigt ein solches Spektrum.

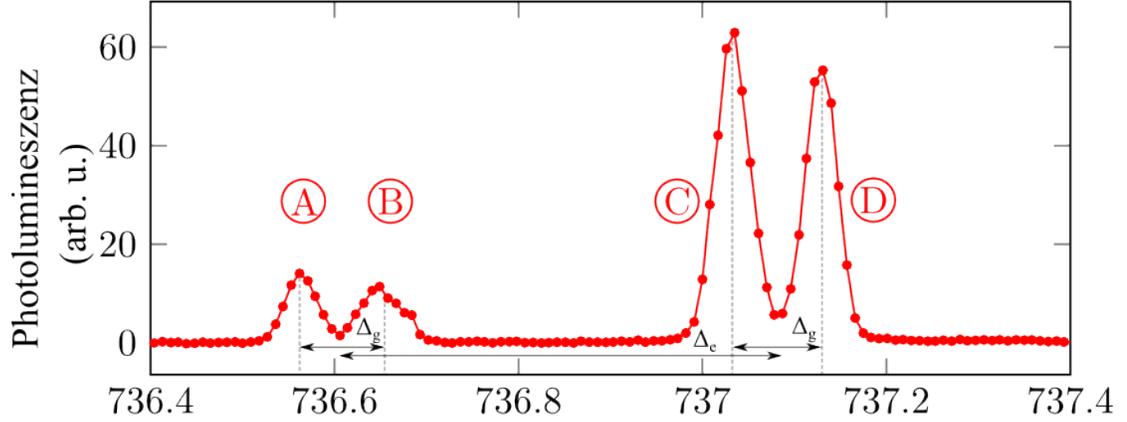


Abbildung 3.3: Typisches ZPL-Spektrum von SiV-Zentren. (aus [18] )

### 3.2.3 Phononen

Zusätzlich ist bei Festkörpern noch Wechselwirkung von Gitterschwingungen mit den Elektronen des Fehlstellenzentrums zu bedenken. Zur Beschreibung dieser verwendet man Phononen, die Quasiteilchen der Gitterschwingung. Wird ein Elektron in einem Gitter angeregt und nimmt ein höheres Energieniveau an, so ändert sich seine Aufenthaltswahrscheinlichkeit. Aus der damit geänderten Ladungsverteilung entstehen veränderte Potentiale und die Ruhepositionen der Gitteratome verändern sich geringfügig. Diese Bewegungen der Atome also bilden die Phononen aus, welche eine Kopplung zwischen den elektronischen Zuständen und der Gitterschwingung ermöglichen. Zur Beschreibung eines Phonons geht man im einfachsten Fall vom Potential eines harmonischen Oszillators aus.

$$V = E_0 + \frac{1}{2}m\Omega^2 R^2 \quad (3.1)$$

Hier ist  $E_0$  die Energie des Grund- bzw. angeregten Zustands,  $m$  die effektive Masse des schwingenden Quasiteilchens,  $\Omega$  die Frequenz der Phononenmode und  $R$  die Auslenkung des Schwerpunkts von seiner Ruheposition. Zur korrekten Beschreibung eines Phonons, welches mit einem elektrischem Feld wechselwirkt, muss man das Modell um einen linearen und einen quadratischen Wechselwirkungsterm ergänzen, so wird aus (3.1):

$$V = E_e + aR + bR^2 + \frac{1}{2}m\Omega^2 R^2 \quad (3.2)$$

Zeichnet man nun statt der Feinstruktur in Abbildung 3.2 die Interaktion der Phononen in das Schema ein, so erhält man Parabeln für die Potentiale der Phononenschwingungen. Die Energie der Phononen ist hierbei quantisiert, die Eigenenergieniveaus des Grund- und angeregten Zustands sind mit  $n, n' = 0, 1, 2, 3 \dots$  gekennzeichnet.

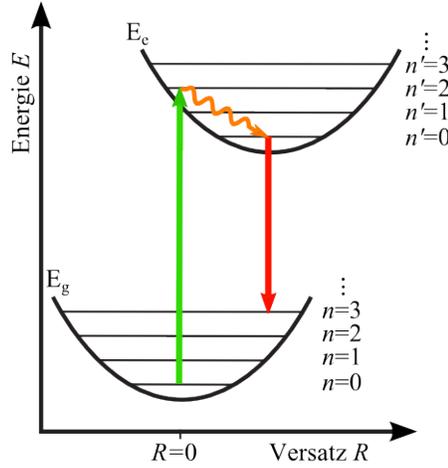


Abbildung 3.4: nach [49]

Wenn man nun noch berücksichtigt, dass elektronische Übergänge viel schneller stattfinden als phononische, so sind wie in Abbildung 3.4 gezeigt nur vertikale optische Übergänge möglich. Dies ist das Franck-Condon-Prinzip. Übergänge mit  $n' = n$ , also ohne Änderung der Phononenmode, bilden daher die ZPL. Weiter wollen wir den horizontalen Versatz  $R$  der Phononeneigenenergieniveaus betrachten. Er ist der veränderten Ladungsdichte des angeregten Zustands und der daraus resultierenden Ruheposition des Phonons geschuldet. Hieraus lässt sich nun die Existenz der phononischen Seitenbänder ableiten.

Ein SiV-Zentrum wird durch ein einfallendes blau-verschobenes Photon, in Abbildung 3.4 durch einen grünen Pfeil angedeutet, in einen  $n' \geq 0$ -Zustand angeregt. Dieser Zustand zerfällt vibronisch in den  $n' = 0$ -Zustand (oranger Pfeil). Die Wahrscheinlichkeit, von einem der angeregten Zustände  $E_e$  in einen der Grundzustände  $E_g$  leuchtend zu relaxieren, ergibt sich aus der Überlappung der Phononenzustände  $n'$  und  $n$  sowie den Auswahlregeln für den Übergang, welche hier jedoch keine Rolle spielen sollen. Ein größerer horizontaler Versatz  $R$  führt also zu einer höheren Wahrscheinlichkeit einer rotverschobenen Seitenband-Emission. Je weniger sich die Ladungsverteilung innerhalb des Farbzentrums von der im Grundzustand unterscheidet, desto stärker ist die Emission der ZPL. Der quadratische Kopplungsterm wirkt sich auf die Frequenz  $\Omega$  des angeregten Zustands aus, die zu  $\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \frac{2b}{m}}$  wird. Je nach Kopplungsstärke kann das zu stark asymmetrischen Spektren für Emissions- und Absorptionsspektren des Farbzentrums führen. Auch hat der quadratische Term Einfluss auf die Temperaturabhängigkeit der Spektren. Für Diamant sind diese Änderung im kryogenen Bereich (hier  $K_B T \ll \hbar \Omega$ ) aber sehr klein, sodass wir sie nicht weiter beachten wollen [50]. Der Effekt der Elektron-Phonon-Wechselwirkung lässt sich über den *Huang-Rhys-Faktor*  $S$  quantifizieren. Er ist durch

$$e^{-S} = \frac{I_{ZPL}}{I_{PSB} + I_{ZPL}} \quad (3.3)$$

gegeben. Hierbei steht  $I_{ZPL}$  für die Intensität der Emission der ZPL und  $I_{PSB}$  für die Intensität der Emission des phononischen Seitenbandes. Der S-Wert entspricht damit auch zugleich dem wahrscheinlichsten Grundzustand, in welchen das System relaxiert. Für SiV-Zentren-Ensembles wurden bisher Werte für  $S$  von 0,08 bis 0,24 gemessen [17][51][52]. Im Vergleich dazu hat man für NV-Zentren ein  $S$  von 3,78, das phononische Seitenband dominiert hier die Emission im Gegensatz zum SiV [50]. Mit Hilfe der Wellenlänge der ZPL und des vibronischen Seitenbandes hat man deshalb bereits starke Merkmale, um bestimmte Farbzentren zu identifizieren [13].

### 3.2.4 Optische Anregung

Bei optischer Anregung ist hier zwischen verschiedenen Arten zu unterscheiden. Die nicht-resonante (*off-resonante*) Anregung erfolgt mit Licht höherer Energie (niedrigere Wellenlänge) als der des anzuregenden Übergangs. Hierbei wird die über die Anregung des optischen Übergangs hinausgehende Energie für Anregung phononischer Zustände verbraucht. Für SiV-Zentren sind Anregungswellenlängen von 496 nm bis 729 nm erfolgreich verwendet worden [47]. Die Anregung mit Licht anderer Wellenlänge als der der Fluoreszenz erlaubt noch das Trennen des Fluoreszenzlichts von der Anregung (Details folgen in Kapitel 4). Man bezeichnet Messungen mit dieser Art von Anregung als Photolumineszenz-Messung (PL, eng. *photoluminescence*).

Alternativ kann resonante Anregung eingesetzt werden, um den Übergang anzuregen. Dabei wird Licht mit der exakten Wellenlänge des Übergangs eingeleuchtet. Da man dieses Licht dann aber nicht von dem Anregelicht unterscheiden kann, filtert man es vor der Detektion heraus und betrachtet das Licht des phononischen Seitenbandes zur Detektion der direkten Absorption des Übergangs [53]. Hier spricht man von einer Photolumineszenzanregungsmessung (PLE, eng. *photoluminescence excitation*).

Bei beiden Anregungsarten ist es darüber hinaus durch gezielte Polarisation der Anregephotonen möglich, einzelne Dipolübergänge der ZPL bevorzugt anzuregen. Dadurch lässt sich der Dipolcharakter des SiV-Zentrums vermessen.

Weiter wollen wir uns mit den Eigenschaften eines SiV-Zentrums in Nanostrukturen befassen.

### 3.2.5 Nanodiamanten

Zunächst sei erwähnt, dass ein SiV in Nanodiamanten die selben, grundlegenden optischen Eigenschaften hat wie in makroskopischem *bulk*-Diamant. Hergestellt werden sie zumeist durch CVD-Verfahren, womit eine direkte *in situ* Erstellung von SiV-Zentren möglich ist (siehe Abschnitt 2.1.1). Problematisch bei Nanodiamant ist jedoch unter anderem der hohe Grad an materialinternem Stress. Starke lokale Spannungen verändern die elektronischen Zustände des Farbzenters und beeinflussen dadurch die Emissionswellenlänge und Linienbreite der ZPL [17]. Auch erwartet man, dass SiV-Zentren bei Diamanten unter 2 nm Korngröße nicht stabil sind. [54] Neben diesen Nachteilen bieten Nanodiamanten

erhebliche Vorteile gegenüber größeren Emittlern. Diamant hat einen vergleichsweise hohen Brechungsindex von  $n = 2,4$  im Wellenlängenbereich der ZPL[24]. Damit reflektiert Diamant Licht, welches unter mehr als  $24,62^\circ$  auf eine Diamant-Luft-Grenzfläche trifft, und auch senkrecht auf eine Grenzfläche treffendes Licht wird noch zu 16,96% reflektiert. Somit wird bereits ein beträchtlicher Teil des Lichts verloren, bevor man ihn überhaupt experimentell aufsammeln kann. Für Nanodiamanten treffen die vorigen Aussagen jedoch nicht zu, wenn der Diamant kleiner als die Wellenlänge des emittierten Lichts ist. Damit lässt sich die Lichtausbeute aus Farbzentrum erheblich steigern, was bereits für SiV-[17][34] als auch NV-Zentren [19] demonstriert wurde. Zusätzlich wurde bereits gezeigt, dass in Nanodiamanten, die gewissen Größen unterschreite, sich bestimmte Phononmoden nicht mehr ausbilden können und somit die unerwünschte Kopplung zwischen ebendiesen und den elektronischen Energieniveaus des SiV-Zentrums unterdrückt wird [55]. Neben der Verwendung von Nanopartikeln gibt es noch weitere Methoden, die Emissions- und Aufsammeleffizienz zu verbessern. Ein relativ neuer Ansatz ist hierbei die Inkorporation von Farbzentren direkt in Wellenleiterstrukturen aus Diamantnanodraht [56].

Alternativ werden klassische Methoden wie Immersionslinsen verwendet, um die Lichtausbeute zu erhöhen. Neben der einfachen Ölimmersion wurden bereits auch Nano-Festkörperimmersionslinsen in synthetische Diamantoberflächen eingebracht [57]. Insgesamt können Nanodiamanten mit einem Farbzentrum trotz der genannten Nachteile neue Anwendungsgebiete eröffnen, da sie aufgrund ihrer winzigen Größe sehr gut in viele andere aktuelle Nanostrukturen integriert werden können. Gezeigt wurden hier bereits Kopplung von Fluoreszenz an Mikroresonatoren [58] als auch Wellenleiterstrukturen [20].

### 3.2.6 Einzelphotonenquellen

Ein beliebter Einsatzzweck für einzelne Diamantfehlstellen in der gegenwärtigen Forschung ist der als Einzelphotonquelle. In diesem Abschnitt wird ein kurzer Anriss des Themas Einzelphotonenquellen gegeben, ausführlichere Abhandlungen zum Thema findet man unter anderem in [34][1]. Das typische Charakteristikum einer Einzelphotonenquelle ist die Photonenstatistik. Mit ihr beschreibt man die zeitliche Verteilung der von der Quelle abgestrahlten Photonen. Für klassische Lichtquellen (z.B. Laser, Glühlampe) spricht man von poisson- bzw. super-Poisson-verteilten Photonen. Nicht-klassisches Licht hingegen hat eine sub-Poisson-verteilte Photonenstatistik. Sind die Photonen einer Lichtquelle perfekt kohärent, so ist die Standardabweichung der Photonenzahl  $\Delta n = \sqrt{\bar{n}}$  genau die Wurzel der mittleren Photonenzahl. Bei super-poisson-verteiltem Licht mit  $\Delta n > \sqrt{\bar{n}}$  spricht man auch von packetiertem (engl. *bunched*), bei sub-poisson-verteiltem Licht mit  $\Delta n < \sqrt{\bar{n}}$  von *anti-bunched* Licht. Zur Feststellung, ob eine nichtklassische Lichtquelle vorliegt, ist sub-poisson-verteiltes Licht zwar ein nötiges Kriterium, aber alleine ist es noch nicht hinreichend. Vielmehr muss gezeigt werden, dass zu einem Zeitpunkt nie mehr als ein einzelnes Photon emittiert wird. Zum experimentellen Nachweis des Vorliegens einer Einzelphotonenquelle verwendet man daher die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t) I(t + \tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle \langle I(t + \tau) \rangle} \quad (3.4)$$

Hier steht  $I(t)$  für die Intensität des Lichts zum Zeitpunkt  $t$ . Die  $\langle \dots \rangle$  bedeuten das zeitliche Mittel über einen langen Zeitraum. In der vorliegenden Form lässt sich aber nur klassisches Licht beschreiben. Man kann zeigen, dass  $g^2(0) \geq 1$  und  $g^2(0) \geq g^2(\tau)$  für alle klassischen Lichtquellen gilt (siehe [1]). Zur Beschreibung quantenmechanischer Phänomene wie einer Einzelphotonenquelle schreibt man (3.4) zu

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle n_1(t) n_2(t + \tau) \rangle}{\langle n_1(t) \rangle \langle n_2(t + \tau) \rangle} \quad (3.5)$$

um, wobei  $n_i(t)$  die Anzahl der registrierten Photonen für den Detektor  $i$  zur Zeit  $t$  ist. Dafür verwendet man den unter dem Namen *Hanbury Brown-Twiss* bekannten Aufbau wie in 3.5 dargestellt, in welchem einfallende Photonen auf einen 50:50 Strahlteiler treffen und danach in einem von 2 Detektoren nachgewiesen werden. Zeitpunkte der Photonendetektion werden gegeneinander korreliert und zeigen die Photonenzustandstatistik der beobachteten Lichtquelle. Der Aufbau wurde von R. Hanbury Brown und R.Q. Twiss im Jahr 1954 als Intensitätsinterferometer demonstriert [59] und ermöglicht es, die Korrelation von Photonen direkt zu messen [60].

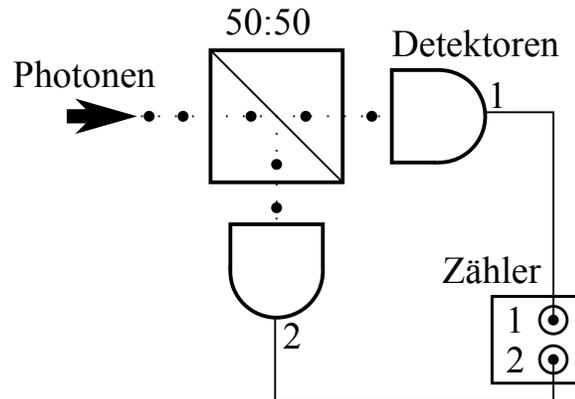


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung eines HBT-Aufbaus zur Messung der  $g^{(2)}$ -Funktion

Abbildung 3.6 zeigt typische Formen der  $g^{(2)}$ -Funktion für verschiedene Arten Licht. Auf der x-Achse ist die Zeit zwischen zwei detektierten Photonen aufgetragen, auf der y-Achse der normierte Wert von  $g^{(2)}(\Delta t)$ . Dieser Wert gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein weiteres Photon mit der Zeitdifferenz  $\Delta t$  zu einem ersten detektierten Photon gemessen wird. Die Senkung der  $g^{(2)}$ -Funktion für nichtklassisches Licht trägt der Eigenschaft einer Einzelphotonenquelle Rechnung, nie zwei Photonen zugleich aussenden zu können. Für gewöhnlich wird unter realen Bedingungen keine Absenkung bis auf 0 gemessen, da man weder Zeit noch einzelne Photonen mit beliebiger Genauigkeit ohne Rauschen messen kann. Wie bereits in Kapitel 3.2.1 besprochen besitzt ein SiV zwei Energieniveaus, die dann noch weitere Aufspaltung zeigen. Es ist aber, da nur ein Elektron die Zustände abbildet, ein quantenmechanisches Zweiniveausystem. Die vibronischen Zustände der Energieniveaus

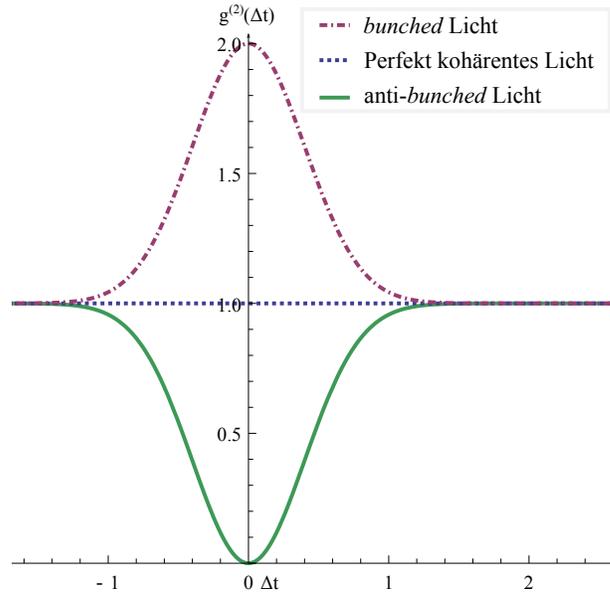


Abbildung 3.6: Plot von  $g^{(2)}(\Delta t)$  für verschiedene Lichtarten

relaxieren deutlich schneller als der optische Übergang des Elektrons. Daher kann man vereinfacht davon ausgehen, dass nach Anregung des Systems durch ein Photon es im Zustand  $E_e$  vorliegt. Aus diesem Zustand relaxiert das System unter Aussendung eines Photons nach einer durchschnittlichen Zeit  $\tau$ , die der Lebenszeit des angeregten Zustands entspricht, wieder in den Grundzustand. Erst nach der Relaxation in den Grundzustand  $E_g$  kann das System wieder durch Absorption eines weiteren Photons angeregt werden. Es ist also durchschnittlich immer mindestens eine Zeit  $\tau$  zwischen dem Aussenden zweier Photonen. Dieses Phänomen nennt man *antibunching*. Einzelne Photonen werden besonders regelmäßig und ohne jegliche Häufung emittiert. Man spricht auch oft von nicht-klassischem Licht, da es nur mit Hilfe der Quantentheorie und des Welle-Teilchen-Dualismus beschrieben und erklärt werden kann. Auch ist der Effekt nicht zu beobachten, wenn man mehrere Einzelphotonenquellen zugleich betrachtet.

# Kapitel 4

## Experimentelles Setup

In diesem Kapitel wird der verwendete Aufbau mit seinen Komponenten erläutert. Zur Verwendung kommt ein konfokales Laser-Scanning-Mikroskop, welches Fluoreszenz der Probe mit SiV-Zentren in Diamantnanokristallen anregt und aufsammelt. Die Fluoreszenz wurde dann, teils mit einem zusätzlichem Monochromator, Einzelphotondetektoren oder Gitterspektrometern bestimmt. Die Probe selbst befindet sich in einem Helium-Kryostat, welcher es ermöglicht, diese Beobachtungen bei Temperaturen im Bereich von rund zehn Kelvin zu machen.

### 4.1 Kryostat

Zur Kühlung der Probe wird ein *Closed-cycle*-Kryostat (Cryomech PT-403-RM mit CP830) verwendet, welcher von der Firma Attocube an die Anforderungen für Laserspektroskopie angepasst wurde. Der Kryostat verwendet unter hohem Druck stehendes Helium, welches durch kontrollierte adiabatische Expansion abkühlt. Dabei bleibt das Kühlmittel jedoch stets in einem geschlossenen Kreislauf. Es ist also anders als z.B. bei Fluss- oder Badkryostaten nicht nötig, regelmäßig Kühlmittel nachzufüllen, um ein Erwärmen des Kryostaten zu verhindern. Das gekühlte Heliumgas mit etwa 22 bar wird in zwei Stufen erst am äußeren und danach am inneren Kältefinger expandiert bis es mit noch etwa 6,2 bar wieder zurück an den Kompressor gepumpt wird. Dabei wird mit einer Periode von 1,3 Hz das Ventil von Kühlmittelzufuhr auf Kühlmittelablass und wieder zurück geschaltet. Dadurch wird der äußere Kältefinger auf 65 K und der Innere auf 4 K gekühlt. Die 65K-Stufe, welche für das Photo 4.1 entfernt wurde und nur in 4.2 angedeutet ist, bildet zugleich noch ein Strahlungsschild für den Probenhalter mit nur einem kleinen Fenster an der Unterseite. Das Innere des Kryostaten wird vor Beginn des Kühlens mittels einer zweistufigen Pumpenkaskade evakuiert. Zuerst wird mittels einer Drehschieberpumpe der Druck auf etwa  $10^{-7}$  bar reduziert, danach wird mittels einer zusätzlichen Turbopumpe (Turbovac 50) der Druck auf unter  $10^{-8}$  bar gesenkt. Der Druck wird mittels einer am Kryostaten angebrachten Drucksonde (Varian CT-100) gemessen, welche jedoch nur im Bereich von 1 bis  $10^{-7}$  bar misst.

Der ermittelte Druck wird als Spannungswert ausgegeben und kann so weiter verarbeitet werden.

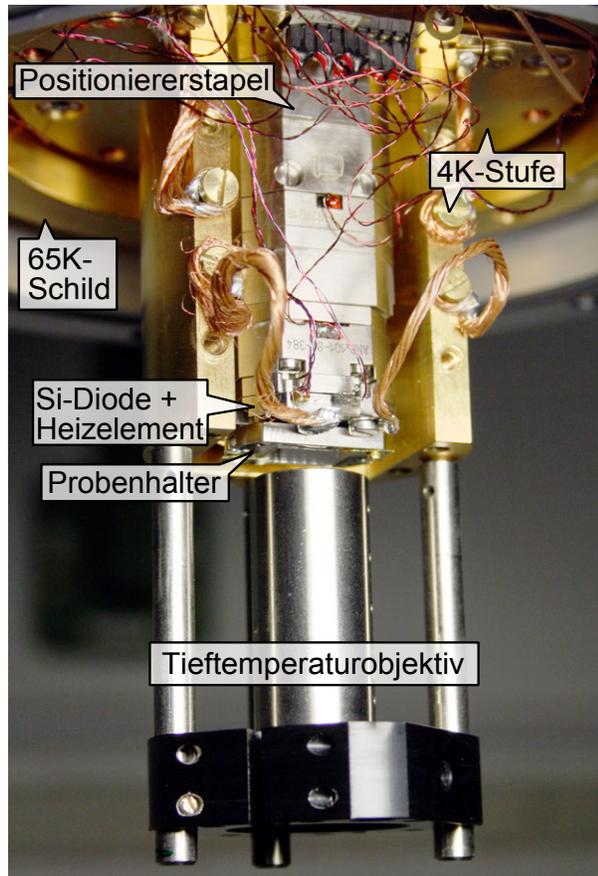


Abbildung 4.1: Foto des 4 K-Kältefingers des Kryostaten (aus [61])

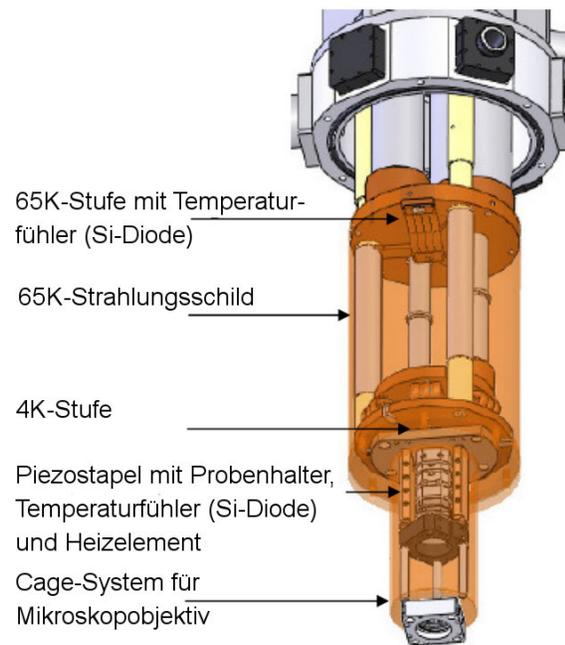


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Kryostaten mit 65 K-Schild (aus [62])

Weiter zeigt Abbildung 4.1 ein Photo, auf dem alle Komponenten des Aufbaus im Inneren des Kühlfingers zu erkennen sind. Prominent im Inneren des 4K-Fingers sieht man den Positioniererstapel, bestehend aus vier Piezopositionierern. Direkt oberhalb des Objektivs ist der Probenhalter, und, zwischen den Positionierern und dem Probenhalter, eine Titanplatte, in welche ein Heizelement und ein Temperaturfühler eingearbeitet ist, zu sehen. Der Temperaturfühler ist eine Siliziumdiode, welche von einem Steuergerät (*Cryocon 32B*) ausgelesen werden kann. Das Steuergerät kann zugleich auch den Probenhalter über das eingebaute Heizelement kontrolliert erwärmen, was temperaturabhängige Messungen ermöglicht. Auch ist der innere Kältefinger über dicke Kupferlitzen mit dem Probenhalter verbunden, um eine gute Kühlung der Probe zu gewährleisten.

Der Piezostapel, bestehend aus zwei Horizontal-Positionierern (*Attocube ANPx101*) und zwei Vertikal-Positionierern (*Attocube ANPz101* und *ANSz100*) ist aufgrund der keramischen Piezoteile thermisch nicht leitend. Die Horizontal- und einer der Vertikal-Positionierer

arbeiten nach dem Haft-Gleit-Prinzip (*engl. slip-stick*). Hierbei wird das zu bewegende Objekt langsam mit Hilfe eines Aktors geschoben, welcher aufgrund der Reibung am Objekt haftet. Durch schnelles, ruckartiges Bewegen kann der Aktor vom Objekt gelöst werden und gleitet etwas über die Oberfläche des Objekts. Durch geschickte Kombination von langsamen Schieben in eine Richtung und ruckartigen Zurückziehen in die entgegengesetzte Richtung kann das Objekt trotz einer geringen Aktorstellweite über längere Strecken bewegt werden. In den hier genannten Positionieren werden keramische Piezos eingesetzt, welche den Aktor bilden. Das Haft-Gleit-Prinzip ermöglicht trotz eines geringen Stellwegs der Piezoaktoren selbst einen sehr großen Stellweg von 5 mm. Zusätzlich ist ein zweiter  $z$ -Positionierer (*ANSz100*) aufgestapelt, welcher nur Anhand des piezoelektrischen Effekts des verwendeten Blei-Zirkonat-Titanats einen geringen Stellweg, aber sehr große Präzision und Wiederholbarkeit aufweist. Alle Positionierer arbeiten mit offener Steuerkette (*engl. open-loop*), sie haben also keine integrierte Rückmeldung über ihre eigene Position.

Das Mikroskop-Objektiv ist an drei Titanstangen am 4 K-Finger befestigt und wird bei vollständiger Auslenkung beider  $z$ -Positionierer mit kleinstmöglichem Abstand über der Probe angebracht, um ein versehentliches Berühren des Objektivs mit der Probe zu vermeiden. Sämtliches Licht zur Messung wird von unten durch 2 spezielle Kryostatglasfenster in den hängend angebrachten Kryostat eingeleuchtet, woraufhin es durch das Objektiv auf die Probe fokussiert wird.

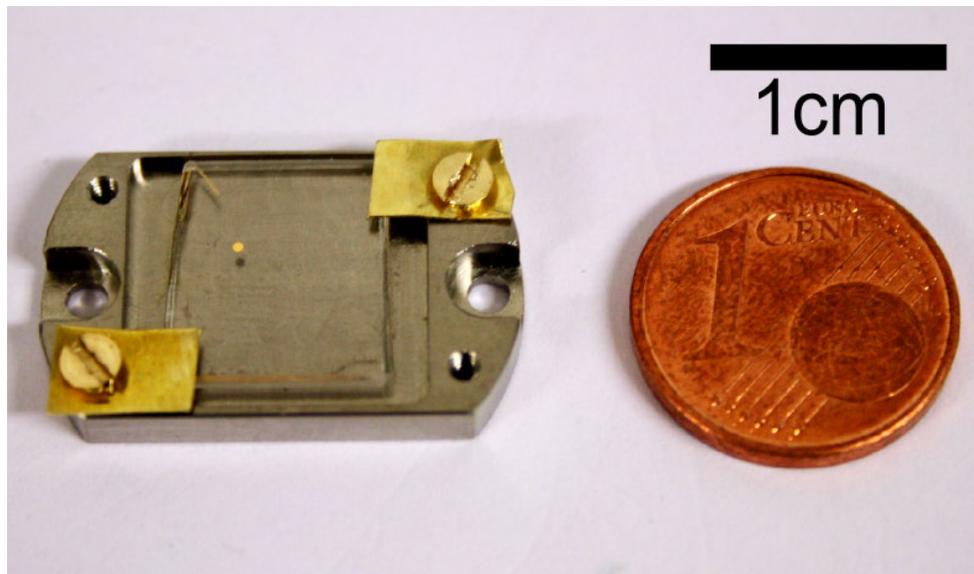


Abbildung 4.3: Probenhalter mit eingelegerter Probe (aus [61])

Bild 4.3 zeigt den demontierten Probenhalter mit eingelegetem Glassubstrat, auf welchem die Probe aufgebracht wurde. Der Halter ist 3 mm dick und hat eine 1 mm tiefe Senkung, in welcher das Glassubstrat mit aufgebrachtene Nanodiamanten liegt. Gut zu erkennen ist der lithographisch aufgebraachte goldene Punkt zur Orientierung. Zwei 0,1 mm dünne Messingblättchen klemmen das Glassubstrat fest und ermöglichen so den Wärmetransport.

## 4.2 Konfokalmikroskop

Weiter betrachten wir in diesem Abschnitt nun die Funktionsweise und die Details des in dieser Arbeit verwendeten Konfokalmikroskops.

### 4.2.1 Prinzip

Im Gegensatz zu konventionellen Lichtmikroskopen, welche die Probe flächig von hinten beleuchten, wird beim Konfokalmikroskop die Probe über den selben Strahlengang beleuchtet, welcher auch für das Aufsammeln des Lichts zuständig ist. Zudem verwendet man eine möglichst punktförmige Anregelichtquelle, die eine gaußartige Abstrahlcharakteristik zeigt, um das Anregelicht möglichst optimal durch das Objektiv auf die Probe fokussieren zu können. Normalerweise benutzt man dazu eine Lochblende im Strahlpfad oder Licht aus einer *single-mode*-Glasfaser. Dies führt zugleich dazu, dass nur der zu untersuchende Bereich beleuchtet wird und man unnötige Fluoreszenz des Hintergrunds vermeidet.

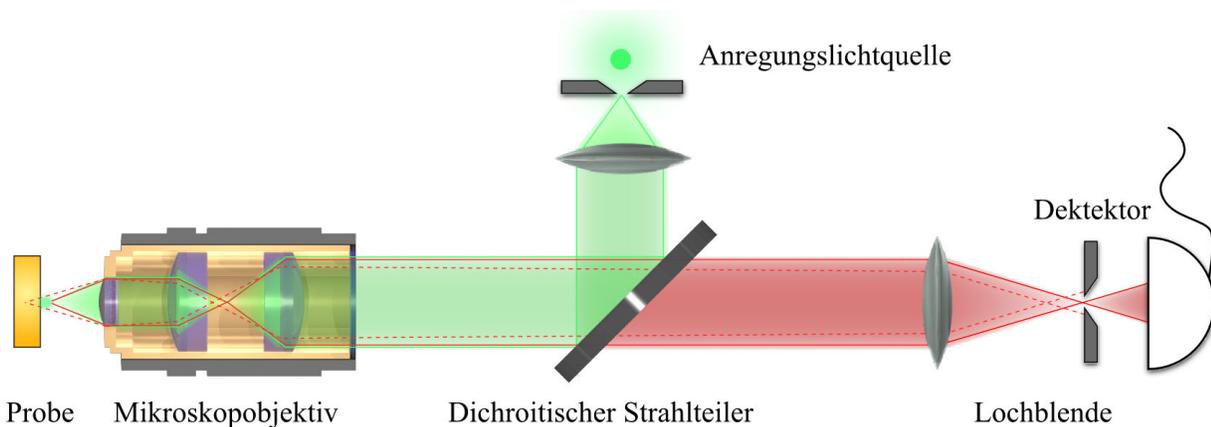


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Konfokalmikroskops (aus [61])

Weiter lässt sich das Signal durch den Einsatz einer Lochblende verbessern, welche nicht aus dem Fokus stammendes Licht blockiert, wie in Abbildung 4.4 mit der gestrichelten Linie angedeutet. Dadurch wird jedoch nur noch ein kleiner Teil der Probe mit dem Mikroskop aufgenommen, der Fokuspunkt hat einen Durchmesser von weniger als einem Mikrometer. Um aber doch mehr als einen Punkt mikroskopieren zu können, wird das Bild gerastert aufgenommen. Ein solches Rasterbild enthält dann für jeden aufgenommenen Punkt Information über das gesammelte Licht. Weiter ist die Überlagerung von Anregelicht (grün) und Fluoreszenzlicht (rot) in Abbildung 4.4 dargestellt. Zum Überlagern und Trennen wird zumeist ein dichroitischer Strahlteiler verwendet, welcher für Licht bis zu einer Grenzwellenlänge hochreflektiv und für das Licht jenseits der Grenze transparent ist. Wird zur Anregung Laserlicht verwendet, so spricht man von konfokaler Laser-Scanning-Mikroskopie.

### 4.2.2 Aufbau

Im Folgenden betrachten wir die einzelnen Elemente des in 4.5 schematisch dargestellten Aufbaus, der für die Untersuchung der Nanodiamanten mit SiV-Zentren bei kryogenen Temperaturen verwendet wurde.

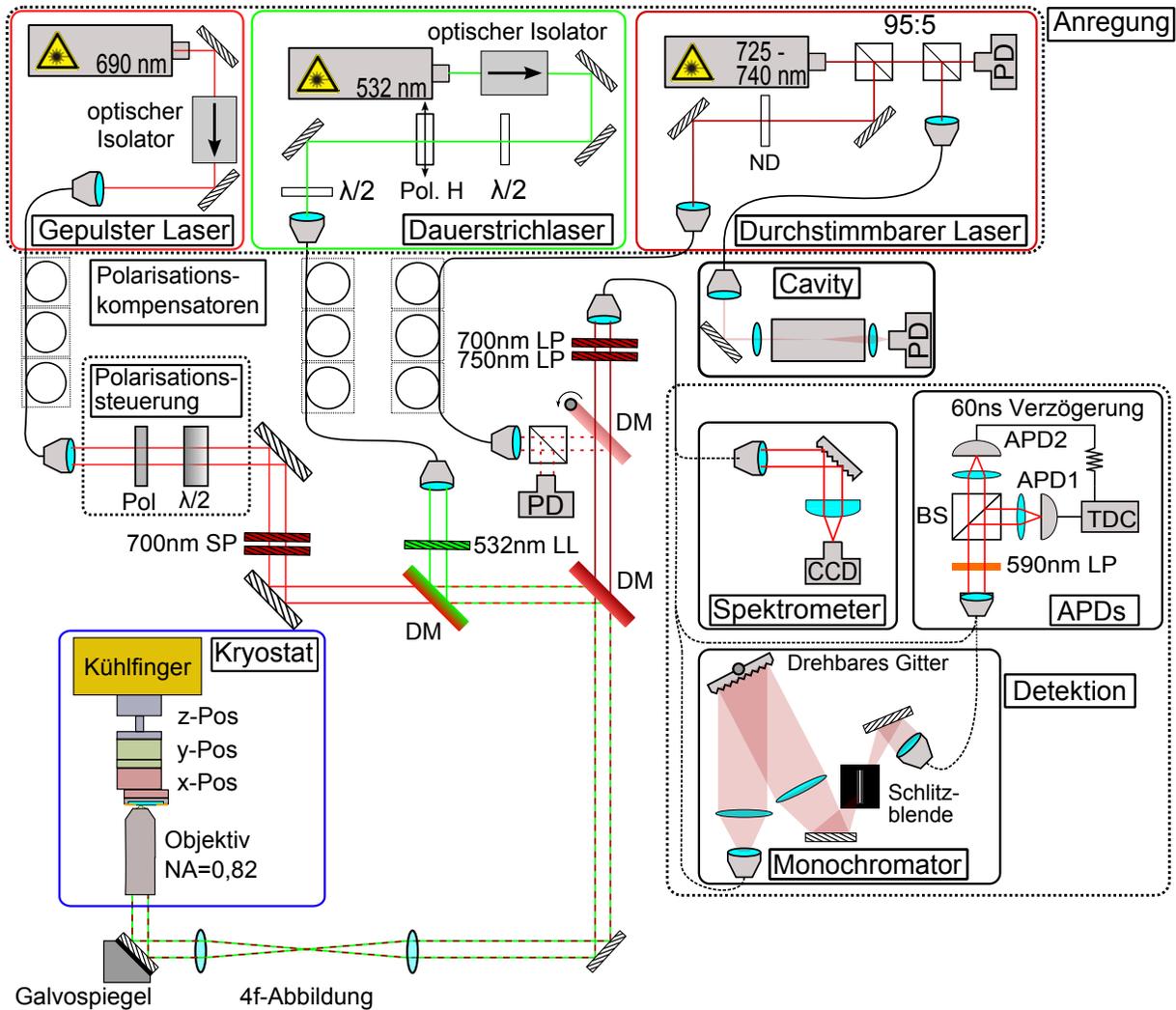


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus (überarbeitete und erweiterte Version aus [61])

#### Laser

Als Lichtquellen zur *offresonanten* Anregung wurden im Versuch mehrere verschiedene Laser eingesetzt. Ein Dauerstrichlaser mit einer Wellenlänge von 532 nm, welcher Licht konstanter Leistung kontinuierlich aussendet, wurde für die meisten Messungen verwendet. Der Laser ist ein frequenzverdoppelter Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-

Laser (*Laser Quantum gem 532*), welcher von einem Diodenlaser gepumpt wird. Die Nennleistung beträgt 300mW, wovon jedoch die Hälfte für einen anderen Experiment über einen 50:50-Strahlteiler abgezweigt wird. Der Laser wird durch einen optischen Isolator (*Thorlabs PENG*) gelenkt, welcher Rückreflektionen von optischen Bauteilen abschwächt, um Schaden am Laser zu vermeiden. Weiter folgt im Strahlpfad ein Leistungssteller aus einem  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen, welches in einem Schrittmotor mit Computersteuerung beliebig um die Strahlachse drehbar ist und einem fest auf H gestellten Polarisators. Ein weiteres  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen in einem Schrittmotor ermöglicht es die Polarisation des Anregelaser beliebig zu drehen. Dann wird das Licht in eine Single-Mode-Faser (*Thorlabs HP460*) gekoppelt. Die Faser wird dann durch einen aus 3 Schlaufen bestehenden Polarisationssteller geführt bevor das Licht am optischen Tisch wieder ausgekoppelt wird. Der Polarisationssteller ist nötig da die verwendete Glasfaser die Polarisation nicht erhält. Durch mechanische Verspannungen im Kern der Faser, wie sie durch Biegung und Verdrehen der Faser entstehen, entstehen Doppelbrechungen und erzeugen beliebig elliptisch polarisiertes Licht. Durch Drehen an den 3 Schlaufen des Polarisationsstellers lässt sich so eine definierte Polarisation des Anregelichts nach der Faser einstellen. Weiter verursacht die Germanium-Dotierung des Faserkernmantels breitbandige Fluoreszenz im Wellenlängenbereich von  $\lambda = 600 - 800$  nm, welche mit einem Interferenzfilter (*Thorlabs FL532-X*) nach dem Auskoppeln aus der Faser unterdrückt wird. Ein entscheidender Vorteil des in der Faser gekoppelten Lichts ist die perfekte Gaußform des ausgekoppelten Strahls, welche besonders bei den im weiteren verwendeten Diodenlasern anders kaum zu erreichen ist.

Zusätzlich kommt ein Puls laser (*PicoQuant LDH-P-690*) zum Einsatz, der kurze Lichtpulse mit 690 nm Wellenlänge in definierter Wiederholrate abstrahlt. Der gepulste Laser wurde zur Bestimmung der Fluoreszenzlebenszeit der SiV-Zentren verwendet, wo möglichst kurze Pulse gewünscht sind. Laut Hersteller ist die minimale Pulsbreite 63 ps, nimmt jedoch je nach eingestellter Leistung drastisch zu. Eigene Messungen der Pulsbreite in Abhängigkeit der eingestellten Laserleistung sind in 4.6 abgebildet. Vermessen wurde der optische Puls mit Photodiode (*Thorlabs SUV7-FC*) und Oszilloskop (*LeCroy WaveRunner 640Zi*) mit 7 bzw. 4 GHz Bandbreite. Zur experimentellen Durchführung wurde die Einstellung 4,0 gewählt, welche die kürzesten Pulse mit einer Halbwertsbreite (FWHM, engl. full width half maximum) von 216,5 ps überhalb der Laserschwelle der eingesetzten Diode ermöglicht. Die maximale Wiederholrate liegt dabei bei 80 MHz. Auch das Licht des Puls lasers wird durch einen optischen Isolator geführt und dann in eine Faser (*Thorlabs SM600*) gekoppelt. Auf dem Experimentiertisch wird das nicht Licht nach dem Auskoppeln noch mit Hilfe eines polarisierenden Strahlteilers gefiltert. Darauf folgt wiederum eine Polarisationstellmöglichkeit, diesmal aber in Form eines Flüssigkristall-Phasenschiebers (engl. liquid crystal retarder, LCR). Dieser wirkt wie ein  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen, welches die vorgegebene Polarisation des Lichts beliebig zu drehen mag, ohne jedoch mechanisch bewegt zu werden. Zudem ist ein Kurzpassfilter (*Thorlabs FES700*) im Strahlgang verbaut, welcher wiederum unerwünschte Faserfluoreszenz ausfiltert.

Zur resoanten Anregung wird ein Dauerstrichlaser (*Sacher Lasertechnik TEC-520-730-20*) mit einer zwischen 725 nm und 740 nm frei einstellbaren Wellenlänge und 20 mW Nenn-

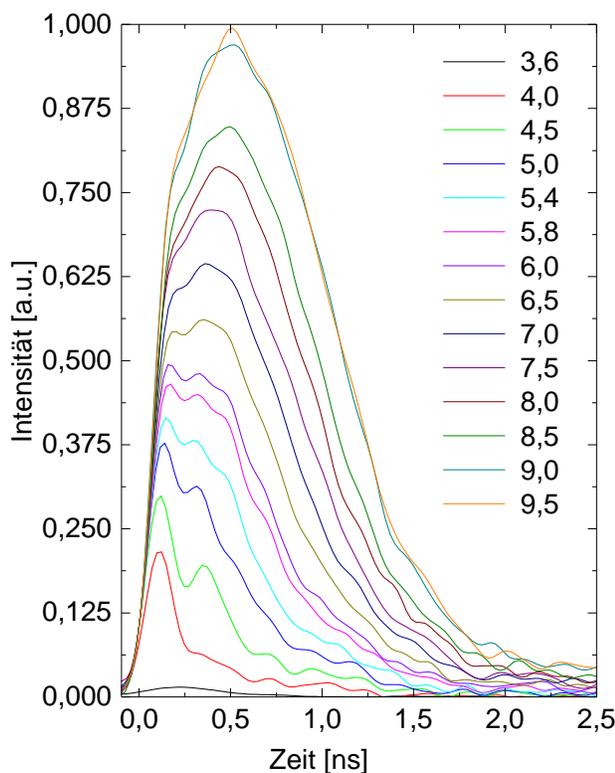


Abbildung 4.6: Gemessener optischer Puls des Pulslasers in Abhängigkeit der eingestellten Leistung (3,6-9,5).

leistung genutzt. Die Durchstimmbarkeit erreicht der Laser durch seine besondere Bauweise in Littman-Metcalf-Konfiguration wie in 4.7 schematisch dargestellt [63].

Dabei ist der optische Resonator außerhalb der Laserdiode angebracht und besteht aus einem optischem Gitter und einem drehbar angebrachten Spiegel, durch dessen Drehung die in erster Ordnung gebeugte Lichtwellenlänge, welche wieder in den Laser zurückreflektiert wird, gewählt werden kann. Im verwendeten Laser wurde der Spiegel mit Hilfe eines elektrischen Schrittmotors bewegt. Zusätzlich kann der Spiegel noch mit einem Piezoelement bewegt werden, um kleinere Bewegungen zu realisieren. Details zu den Ergebnissen der Lasereinstellbarkeit im Unterabschnitt 4.3. Auch der durchstimmbare Laser wird durch einen optischen Isolator geleitet, welcher hier bereits werkseitig verbaut ist. Danach folgt ein anamorphes, antirefleksionsbeschichtetes Prismenpaar (*Thorlabs PS871-B*) zur Verbesserung des Strahlprofils. Mit Hilfe zweier 95:5-Strahlteiler wurden dann 5% des Laserlichts abgezweigt, von welchem wiederum 5% zur Leistungsmessung auf eine Photodiode geleitet wurden. Die weiteren 4,5% werden in eine Glasfaser (*Thorlabs SM600*) mit FC-APC-Stecker (engl. Fiber coupler angled physical contact) gekoppelt. Die Abschrägung ist nötig, um Rückreflexionen an der Ferule der Faser zu vermeiden, welche sonst trotz optischen Isolators zu Rückkopplung in den Laserresonator und damit Verstimmung des Lasers führt. Der Hauptstrahl wird durch ein Neutraldichtefilter-Rad (*Thorlabs NDM4/M*), welches an

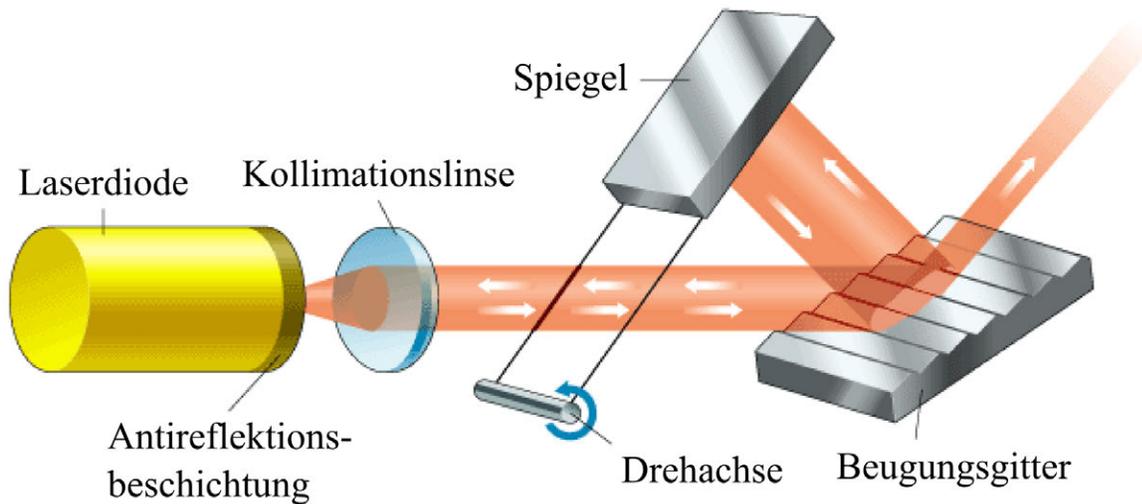


Abbildung 4.7: Schematische Abbildung eines durchstimmbaren Diodenlasers in Littman-Metcalf-Konfiguration. Entnommen aus [64]

einem computergesteuerten Schrittmotor angebracht ist und Abschwächungen des Lasers um bis zu  $10^4$  ermöglicht. Genutzt wird das Rad zu Steuerung der Lichtleistung des Lasers, welcher je nach gewählter Länge stark schwankende Leistungsabgabe aufweist. Auch ändert sich die Strahlrichtung des Lasers je nach eingestellter Wellenlänge geringfügig, was zu veringerteter Einkoppeleffizienz in die verwendete Glasfaser führt. Das Licht wird dazu mit einem Strahlteiler (*Thorlas BP108*) zur Messung auf eine Photodiode gelenkt, die kurz vor der Überlagerung des Hauptstrahls mithilfe eines dichroitischen Spiegels (*Semrock FF757-Di01*) erfolgt.

### Passive Bauelemente

Wie bereits angedeutet erfolgt die Überlagerung der verschiedenen Laserstrahlen durch dichroitische Spiegel, welche in Abbildung 4.5 mit der Abkürzung *DM* versehen sind. So ermöglichen die Bauteile die Überlagerung aller Anregestrahlen und damit die Anregung der Probe mit unterschiedlichen Lichtquellen ohne dazwischen Justagearbeiten vornehmen zu müssen.

Der dichroitische Spiegel zur Überlagerung der resonanten Anregung ist beweglich angebracht, sodass man den Spiegel bei offresonanter Anregung aus dem Strahlpfad entfernen kann, da er sonst die ZPL-Fluoreszenz aus dem Detektionspfad filtern würde. Zusätzlich sind im Detektionspfad als letztes Element vor dem Detektionsfaserkoppler zwei Langpassfilter verbaut. Ohne diese würde das reflektierte Anregesignal die Fluoreszenzemission deutlich übersteigen. Die Auslöschung des aus dem Setup reflektierten Lichts in Transmissionsrichtung der dichroitischen Spiegel würde nicht ausreichend.

Für resonante Anregung wird ein daher Langpass-Interferenzfilterset (2x *Thorlabs FEL0750*) vor den Faserkoppler der Detektion in den Strahlpfad gebracht, welches das

Anregungslaserlicht ausfiltern soll, bevor es in Detektionsfaser gekoppelt wird. Ein einzelner Filter erreicht eine Abschwächung um etwa  $10^4$  für Wellenlängen unter 750 nm. Diese Filter werden bei offresonanter Anregung durch zwei Langpass-Interferenzfilter (Semrock FF01-692/LP) ersetzt, welche bei einer Wellenlänge unter 692 nm jeweils eine optische Dichte von etwa 4,6 aufweisen.

Nach den Filtern wird das Licht in eine Glasfaser gekoppelt, welche dann an die verschiedenen Analysatoren angeschlossen werden kann. Hier war ursprünglich eine Single-Mode-Faser (*Thorlabs SM600*) im Einsatz, die mit ihrem Kerndurchmesser von 4,6  $\mu\text{m}$  zugleich die Funktion eines räumlichen Filters erfüllte. Diese Faser wurde durch eine Multi-Mode-Faser (*Thorlabs M42*) mit 50  $\mu\text{m}$  Kerndurchmesser ersetzt, welches es ermöglicht etwa zehn mal mehr Licht aufzusammeln als zuvor. Die deutlich geringere räumliche Auflösung durch Verlust der kleinen Lochblende stellte sich jedoch als experimentell vernachlässigbar heraus.

Als Mikroskopobjektiv kommt ein für Hochvakuum und Tieftemperatur taugliches Modell (*Attocube LT-APO/VISIR/0.82*) zum Einsatz. Es ist beidseitig für den Wellenlängenbereich von 400 bis 1000 nm antireflexbeschichtet und hat für Licht der ZPL eine Transmission von über 99%. Bei einem Arbeitsabstand von 0,65 mm erreicht es eine numerische Apertur (NA) von 0,82 und ist für die Wellenlängen von 565 bis 770 nm als apochromatisch, spezifiziert. Damit erreicht das Mikroskop eine Aufsammeleffizienz von

$$\eta_{\text{Objektiv}} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \cos \left( \arcsin \left( \frac{\text{NA}}{n_{\text{Luft}}} \right) \right) \right] = 0,18 \quad (4.1)$$

Um die Probe mit dem Konfokalmikroskop rastern zu können, muss sich entweder die Probe unter dem Fokus des Objektivs bewegen oder das Licht muss die Oberfläche abfahren. Der ursprüngliche Plan mit Hilfe der bereits in 4.1 erwähnten Piezopositionierer erwies sich als nicht praktikabel, da die Reproduzierbarkeit des Rasters nicht gegeben war ([61]). Die Positionierer wurden aber dennoch zur groben Positionierung des Bildausschnitts verwendet.

Das Rastern der Probe erfolgt Mittels eines 4f-Aufbaus. Der kollimierte Anregungsstrahl wird durch zwei achromatische Linsenpaare (*Thorlabs AC254-125-B-ML*) die im doppelten Fokalabstand stehen abgebildet. Dabei kann der Strahl durch einen im Fokalabstand vor dem ersten Achromaten stehenden Spiegel mit Galvanometerantrieb (*Optics in Motion OIM101*) aus der optischen Achse gekippt werden. Diese Verkippung wird durch die 4f-Abbildung in einen parallelen Strahlversatz gewandelt und ermöglicht so das gezielte Rastern der Probe. Der Galvospiegel, welcher mit einem geschlossenen Regelkreis ausgestattet ist und eine Winkelgenauigkeit besser als 2  $\mu\text{rad}$  aufweist, verfügt über eine elektronische Steuerung die Computer angesprochen wird und erlaubt so mehr als 100 Rasterpunkte pro Sekunde.

### 4.3 Cavity

Weiter wird zum Messen des Verstimmungsverhaltens des Lasers ein Fabry-Pérot-Interferometer verwendet. Dabei bilden zwei teilweise durchlässige Spiegel einen optischen Hohlraumresonator, der nur für Licht welches die Resonanzbedingung erfüllt und sich nicht durch Interferenz auslöscht, transparent ist. Im Experiment wurde ein Resonatorkörper mit 10 cm Länge verwendet, der an beiden Enden Schraubgewinde aufweist, in welche die Spiegelhalterungen mit Spiegel eingeschraubt werden. Die eingesetzten Spiegel sind zugleich plan-konvexe Linsen mit einem Krümmungsradius  $R = 100$  mm. So fokussieren beide Spiegel den im Resonator verbleibenden Strahl auf sich selbst, man spricht von symmetrischer konfokaler Konfiguration. Weiter ist es nötig das Strahlprofil an die optische Mode des Resonators anzupassen und den dispersiven Effekt des plan-konvexen Spiegels auszugleichen. Eine detaillierte Herleitung dazu findet sich in Anhang A.

Das Auslesen der Transmission durch den Resonator erfolgt mittels einer weiteren Linse welche das Licht auf eine Fotodiode fokussiert. Diese wird über ein computergestütztes Spannungsmessgerät ausgelesen und die Daten können als Referenz verwendet werden.

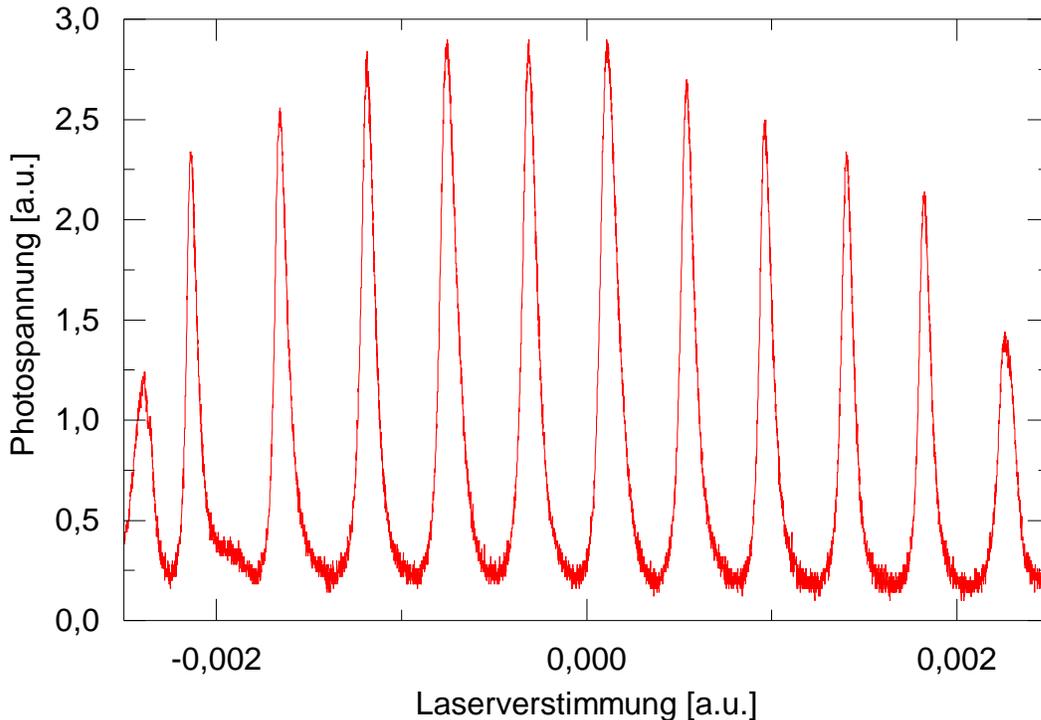


Abbildung 4.8: Gemessenes Signal der Photodiode hinter dem Fabry-Pérot-Etalon. Abgebildet ist ein Bereich von etwa  $10 \cdot 1,5$  GHz.

Da solche Resonatoren sehr empfindlich auf Temperaturschwankungen reagieren, wurde der hier verwendete auf einer temperaturstabilisierten Platte angebracht und mit einer

Abdeckung versehen, welche schnellen Wärmeaustausch mit der Umgebung verhindern soll.

## 4.4 Detektoren

Während wir uns bisher hauptsächlich mit den Bauteilen des Konfokalmikroskops befasst haben, gehen wir nun zu den Analysegeräten über. Hierbei sei erwähnt, dass je nach gewünschter Information die jeweiligen Geräte an die Glasfaser angeschlossen werden müssen.

### 4.4.1 Gitterspektrometer

Zunächst beginnen wir mit dem Gitterspektrometer. Es ermöglicht das aufgesammelte Licht spektral zu untersuchen. Dies ist besonders deshalb von Bedeutung, da nur so die Unterscheidung von SiV-Zentren von anderen reflektierenden Partikeln auf der Probe möglich ist. Weiter kann damit der Einfluss von Temperatur auf das Spektrum eines SiV-Zentrums untersucht werden. Der Aufbau des Spektrometers ist in Abbildung 4.5 vereinfacht dargestellt. Das Gerät ist eine Eigenkonstruktion und verwendet ein Blaze-Gitter mit 600 Linien pro mm. Das Licht aus der Detektionsfaser wird ausgekoppelt, von einer achromatischen Linse auf das Gitter kollimiert und dort reflektiert. Davon wird die erste Beugungsordnung mit einer Linse (*Thorlabs LA1433-B*) auf einen CCD-Sensor (*Andor iDus 401A-BV*) fokussiert. Der CCD-Sensor wird rückseitig beleuchtet und aktiv auf  $-60^{\circ}\text{C}$  gekühlt, was eine effiziente und rauscharme Messung mit einer Quanteneffizienz  $\eta \geq 80\%$  im Spektralbereich von 450 - 750 nm ermöglicht. Die erreichbare Auflösung wurde in [61] mit  $\Delta\lambda \geq 0,9\text{ nm}$  bestimmt. Dies ist leider nicht genug, um die Feinstruktur der ZPL eines SiV-Zentrums aufzulösen (vergleiche Abschnitt 3.2.2).

### 4.4.2 Monochromator

Zusätzlich zum Spektrometer wird ein Monochromator eingesetzt, welcher auch in Abbildung 4.5 dargestellt ist. Der modulare Aufbau des Experiments mit Glasfasern erlaubt, es wahlweise Messungen mit oder ohne Monochromator zu tätigen. Im Gegensatz zum Spektrometer ermöglicht es der Monochromator die anschließende Verwendung von Einzelphotonendetektoren zur Messung der Fluoreszenz. Prinzipiell funktioniert der Monochromator wie auch das Spektrometer, aber statt in einer Kamera wird das gebeugte Licht durch eine Spaltblende geführt. Die Blende filtert das Licht räumlich und ermöglicht so die Selektion eines kleinen Wellenlängenbereichs. Das Licht, das die Blende passiert, wird dann wieder in eine Faser gekoppelt und kann an den Einzelphotonendetektoren gemessen werden. Eine detaillierte Charakterisierung findet sich in B.

Der Monochromator besteht aus einem Faserkoppler, welcher das Licht aus der Detektionsfaser (*Thorlabs M42*,  $\text{NA} = 0,22$ ) auskoppelt. Der hier verwendete Koppler ist so justiert dass er das Abstrahlverhalten einer Single-Mode-Faser mit einer NA von 0,12 nachbildet.

Das ausgekoppelte Licht wird dann von einer Linse mit 150 mm Brennweite und 2 Zoll Durchmesser kollimiert. Der auf 30 mm aufgeweitete Strahl trifft dann auf ein Blaze-Gitter mit 1200 Linien pro mm und einer Blaze-Wellenlänge von 750 nm (*Thorlabs GR50-1208*). Das 50x50 mm Gitter hat einen Blaze-Winkel von  $26,44\text{ m}^\circ$ . Die erste Reflektionsordnung des Gitters wird dann mit einer Zwei-Zoll-Linse mit 500 mm Brennweite aufgesammelt. Im Fokus des Strahls steht dann die verstellbare Schlitzblende (*Thorlabs VA100/M*), die eine minimale Öffnung von etwa  $20\ \mu\text{m}$  aufweist. Eine weitere 1-Zoll-Linse mit 65 mm Brennweite kollimiert den Strahl, der dann mit einem Faserkoppler in eine weitere Glasfaser gekoppelt wird.

Ungewöhnlich an dem für das Experiment aufgebauten Monochromator ist die Verwendung von Linsen. Bei den meisten kommerziell erhältlichen Spektrometern werden stattdessen Hohlspiegel verwendet, welche intrinsisch keine chromatische Dispersion aufweisen.

Die Transmissionseffizienz des Monochromators wurde während des Aufbaus experimentell bestimmt und später abgeschätzt. Dabei wurde schmalbandiges Laserlicht bei optimaler Ausrichtung des Gitters zu knapp 50 % transmittiert. Im späteren Aufbau mit allen Faserverbindungen und anderen Verlustquellen wurde noch eine Effizienz von etwa 20 % erreicht. Wenn man zusätzlich berücksichtigt, dass der transmittierte Anteil nur ein Bruchteil der Gesamtemission eines Nanodiamants darstellt, sieht man leicht, dass deutlich geringere Zählraten bei Messungen mit dem Monochromator erwarten sollte.

### 4.4.3 APDs

Als Messinstrumente für Polarisations-, Leistungs- und spektroskopische Messungen sind zwei Einzelphotonendetektoren (APD, engl. avalanche photodiode) in einer HBT-Konfiguration aufgebaut.

Das Auftreffen eines einzelnen Photons auf der aktiven Fläche der Diode erzeugt dort durch den photoelektrischen Effekt mit der Wahrscheinlichkeit  $\eta$ , die als Quanteneffizienz des Detektors definiert ist, ein freies Elektron. Dieses verursacht durch eine hohe Vorspannung an der Diode eine Elektron-Loch-Lawine, welche so die Detektion eines einzelnen Photons ermöglicht. Die Lawinenphotodioden (*Perkin Elmers SPCM AQRH-15*) sind dabei mit einer aktiven Dämpfung im Durchbruchfall versehen. Dadurch ist eine geringe Totzeit von ca. 100 ns möglich. Die extrem lichtempfindlichen Detektoren sind in einer verschlossenen Metallkiste untergebracht und Licht wird in einer Glasfaser in die Kiste geführt, um möglichst nur Photonen der Fluoreszenz zu detektieren. Dabei sind die Detektoren auf zwei Ausgangsseiten eines 50:50-Strahlteilers in der Hanbury-Brown-Twiss Anordnung angebracht. Zusammen ermöglicht der Aufbau interferometrische Messung der Lichtintensitäten und damit der statistischen Korrelation der Photonen. Diese Art von Messung wird theoretisch in Abschnitt 3.2.6 behandelt.

Als problematisch bei dieser Konfiguration erwies sich der sogenannte *Breakdown Flash*, einer Photonenemission in einer der Lawinendiode bei der Detektion eines Fluoreszenzphotons [65]. Diese Photonen werden dann wiederum von der anderen APD detektiert. Um dieses optische Übersprechen der beiden Detektoren zu verhindern, wurde der Strahl im Faserkoppler bereits auf die APD hinter dem Filter fokussiert. Da der Strahlpfad zur

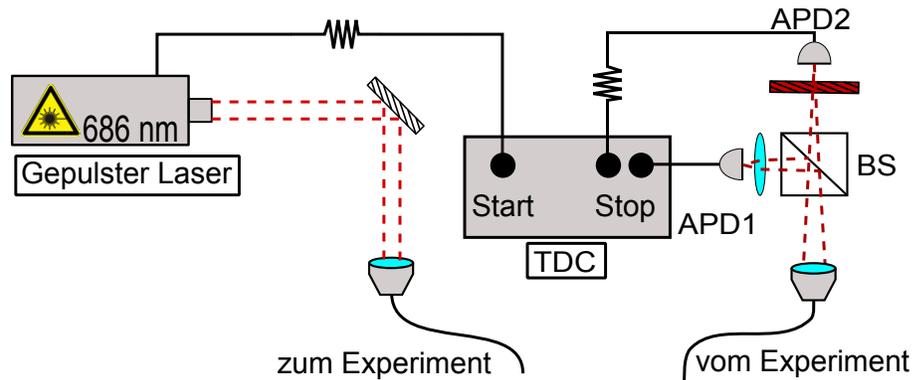


Abbildung 4.9: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Lebenszeitmessung

zweiten APD unterschiedlich lang ist, wurde hier eine weitere Linse eingesetzt, welche den Strahl auf die aktive Sensorfläche fokussiert und zugleich breakdown flashes nur defokussiert auf die andere APD lenkt.

Weiter ist mit dem APD-Aufbau auch das Messen von Fluoreszenzlebenszeiten möglich. Mit einem Aufbau wie in Abbildung 4.9 ist es möglich, anhand zeitaufgelöster Fluoreszenzspektroskopie die Lebenszeit eines SiV-Ensembles zu messen. Zusätzlich kann der in Abbildung 4.5 dargestellte Monochromator vor die APDs angesteckt werden, um eine spektrale Selektion der Messung zu ermöglichen. Die Anregung der Fluoreszenz erfolgt dabei immer mittels des 690 nm-Pulslasers, welcher für jeden optischen Puls auch ein elektrisches Signal nach dem NIM-Standard erzeugt. Dieses wird mittels Wandler Elektronik in einen TTL-Puls gewandelt, welcher von einer Zeit-zu-Digital-Konvertereinheit (*engl. time-to-digital converter, TDC*) aufgenommen wird. Zugleich misst der TDC auf weiteren Eingängen die Signale für detektierte Photonen der APDs. Für jedes Ereignis wird ein Zeitstempel aufgezeichnet, sodass mit Hilfe eines Histogramms die Häufigkeit einer Detektion zur Zeitdifferenz der Ereignisse relatiert werden kann. Im vorliegenden experimentellen Aufbau wurde dazu in selbstdesigner TDC auf Basis des *Acam TDC-GPX*-Chips auf möglichst kleine zeitliche Intervalle optimiert. Die TDC-Einheit in der eingesetzten Konfiguration besitzt dabei eine minimale Zeitaufösung  $\Delta_{\text{TDC}} \geq 57 \text{ ps}$  und verarbeitet Start-Stop-Ereignisse mit maximal 9 MHz.



# Kapitel 5

## Spektroskopische Tieftemperaturuntersuchungen

Das bisher beschriebene experimentelle Setup mit Konfokalmikroskop, diversen Laserlichtquellen und dazugehörigen Analysegeräten wird dazu verwendet die Fluoreszenzeigenschaften der SiV-Zentren zu untersuchen. Die kryogene Umgebung ermöglicht dabei, die thermische Verbreiterung der Spektrallinien auf ein Mindestmaß zu beschränken. Der Einsatz eines geschlossenen Kryostatensystems ermöglicht diese Untersuchungen ohne einschränkende thermische Drifts durchzuführen. Die zu untersuchenden Nanodiamanten wurden im CVD-Verfahren hergestellt und sind zur Untersuchung auf einem Quarzglassubstrat mit Polyvinylalkohol aufgebracht. Eine detaillierte Beschreibung der Probenherstellung ist in [61] zu finden. Grundsätzlich ist die maximale Zählrate, die ein Zwei-Niveau-System emittieren kann, durch die natürliche Lebenszeit des angeregten Zustands begrenzt (vergleiche Abschnitt 3.2). Mit steigender Anregeleistung erhöht sich die Emissionsrate bis zur Leistung, ab welcher einem spontanen Zerfall eine sofortige Wiederanregung erfolgt. Diese Leistung nennt man Sättigungsleistung. Bei weiterer Erhöhung der Anregeleistung erhöht sich nur die Hintergrundfluoreszenz.

Im Folgenden werden die erfolgten Messungen und daraus resultierende Ergebnisse sowie eine Interpretation ebendieser dargelegt. Dabei werden zuerst zeitunabhängige Eigenschaften der Fluoreszenz wie Polarisations- und Leistungsabhängigkeit untersucht. Auch betrachten wir die unterschiedlichen Anrege- und Detektionsschemata und deren Einfluss auf das Resultat. Dann werden wir diese Ergebnisse mittels spektraler Analyse im Monochromator weiter betrachten. Letztendlich wird noch die Dynamik des SiV-Zentrums in Form der Fluoreszenzlebensdauer untersucht, wobei auch hierbei der Einfluss von Polarisation und spektraler Selektion betrachtet wird.

### 5.1 Leistungsabhängige Untersuchung

Um das Sättigungsverhalten eines SiV-Zentrums zu untersuchen, wird ein Nanodiamant im Fokus des Laserstrahls platziert und dann mittels der Einzelphotonendetektoren die

aufgesammelte Fluoreszenz gemessen. Dabei wird die Leistung des Anregelichts verändert gegen die Zählrate der Detektoren aufgetragen. Aus solchen Messungen lassen sich gleich mehrere Ergebnisse gewinnen. Einmal kann man Sättigungszählrate und Leistung bestimmen und zusätzlich, wenn man noch die Hintergrundzählrate der Probe aufnimmt, auch das Signal-zu-Rauschen Verhältnis des Messaufbaus.

Zum Bestimmen der Sättigung eines Nanodiamanten wird also dieser in den Fokus des Laserstrahls gebracht. Für Photolumineszenzspektroskopie wird der Nanodiamant mit dem Licht des Nd:Yag-Lasers mit 532 nm Wellenlänge zur Anregung verwendet. Die Leistung des Lasers wird mit Hilfe der Schrittmotorsteuerung von 0 bis 10 mW in 0,05 mW-Schritten erhöht. Für jede Leistungsstufe wird für 750 ms die Photonenzahl aufgenommen. Die Zeit ergibt sich aus der Schwingungsperiode des Kühlsystems des Kryostaten, um mögliche Einflüsse der Schwingung zu egalisieren (siehe Abschnitt 4.1). Die Bestimmung der Hintergrundfluoreszenz erfolgt durch Fokussieren des Lasers auf eine nicht mit Nanodiamanten besetzte Stelle des Probenträgers. Wichtig ist hierbei, dass die Messung nicht sofort nach Wahl des Ortes erfolgt, sondern man die Probe an der Stelle erst mit intensivem Laserlicht ausbleicht. Andernfalls kann das Ausbleichen der Probe die Messergebnisse stark verfälschen, da die Bleichzeit von etwa gleicher Größenordnung wie die Messzeit einer Leistungsserie ist.

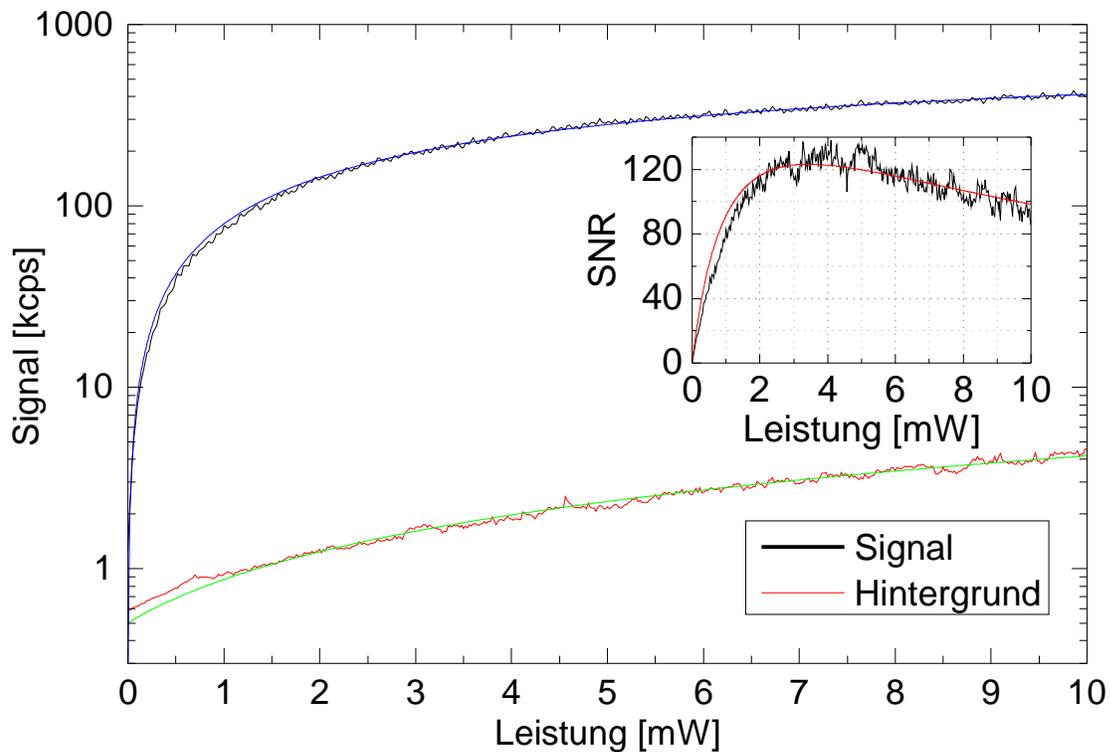


Abbildung 5.1: Messung der Sättigungskurve eines SiV-Zentrums mit einer Singlemode-Faser. Das Inset zeigt das Signal-zu-Rausch Verhältnis.

Auf Abbildung 5.1 sieht man die Ergebnisse eines ausgewählten Nanodiamants und des benachbarten Hintergrunds. Die Hintergrundzählrate in blau steigt gut erkennbar linear mit der eingestrahlten Leistung. Im Gegensatz dazu zeigt die rote Kurve für den Nanodiamanten eine deutliche Abflachung bei höheren Leistungen. Dies lässt sich mittels einer mathematischen Formel für das Zwei-Niveau-System mit einem Korrekturterm für Hintergrundfluoreszenz beschreiben:

$$F_{Sig}(P_{Exc}) = F_{Sat} \frac{P_{Exc}}{P_{Exc} + P_{Sat}} + F_{Bg}(P_{Exc}) \quad (5.1)$$

Hierbei steht  $F_{Sig}(P_{Exc})$  für die Zählrate in Abhängigkeit der Anregeleistung  $P_{Exc}$ .  $F_{Sat}$  beschreibt die Sättigungsleistung der SiV-Zentren im untersuchten Nanodiamant und  $F_{Bg}$  die Hintergrundfluoreszenz, wiederum in Abhängigkeit von der Anregeleistung. Der Wert für  $F_{Bg}$  wiederum besteht aus der Dunkelzählrate  $F_{Dc}$  der APDs sowie einer linearen Abhängigkeit  $P_{Exc} \cdot F_{BgLinear}$ . Diese Werte lassen sich einfach aus einer Nullmessung sowie einer linearen Anpassung der Messdaten für die Hintergrundfluoreszenz gewinnen. Für jeden vermessenen Nanodiamanten lässt sich dann sowohl Sättigungsleistung als auch Zählrate durch Anpassung der Messdaten an die Funktion ermitteln.

Die Ermittlung der Sättigungsleistung auf diese Weise ist jedoch nicht problemlos. Es steht nur begrenzt Anregeleistung im Aufbau zur Verfügung, was gerade die Genauigkeit der Bestimmung der Sättigungsleistung reduziert. Auch ist die in jedem Nanodiamant enthaltene Menge an SiV-Defektzentren unbekannt und unterscheidet sich mutmaßlich stark. Weiter sind die Oberflächeneigenschaften der Nanodiamanten unbekannt, so können sich z.B. Graphitreste an Stellen der Oberfläche angesammelt haben, welche Absorptions- und Emissionscharakteristika einzelner Diamant verändern. Den größten Einfluss erwartet man aber durch die Orientierung der Dipole der Fehlstellenzentren gegenüber der Strahlachse des Konfokalmikroskops. Nur wenn die Dipolachse senkrecht zur Strahlachse steht, erreicht man die maximale Kopplungseffizienz des Anregelichts mit den Absorptionsdipolen der SiV-Zentren [66]. Da jeder Nanodiamant viele einzelne Defektzentren enthält, die jeweils entlang einer der drei  $\langle 111 \rangle$ -Kristallachsen orientiert sein können, und zudem die einzelnen Nanodiamanten zufällig auf der Probe verteilt sind, lässt sich keine finale Aussage über den *wahren* Wert treffen. Ein genauer Wert für die Sättigungsleistung ist aber hilfreich, um Sättigungsverbreiterung der Spektrallinien und eine Fluoreszenzsättigung bei HBT-Messungen zu vermeiden.

Weiter lässt sich das Signal-zu-Rausch Verhältnis (engl. *signal to noise ratio*, kurz SNR) aus den Sättigungsmessungen errechnen. Dies erfolgt mittels folgender Formel:

$$\text{SNR}(P_{Exc}) = \frac{F(P_{Exc}) - F_{hg}(P_{Exc})}{F_{hg}(P_{Exc})} \quad (5.2)$$

Die in Abbildung 5.1 gezeigte Messung wurden noch mit einer Monomodenfaser zum Aufsammeln der Fluoreszenz durchgeführt. Spätere Messungen wurden dann nach dem Umbau des Setups auf eine Multimodefaser zum Aufsammeln der Fluoreszenz gemacht. Abbildung 5.2 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung. Wie man sieht ist zwar die totale

Hintergrundzählrate gestiegen, aber das Signal-zu-Rausch Verhältnis ist dennoch so gut wie zuvor. Zudem zeigt das Signal-zu-Rausch Verhältnis kein Rückgang bei hohen Anregeleistungen. Wichtig ist hierbei noch zu erwähnen, dass erst im Zuge des Umbaus auf die Multimodefaser ein optischer Bandpassfilter in den Detektionspfad gebracht wurde. Dieser reduziert die Menge der aufgesammelten Hintergrundfluoreszenz gegenüber den zuvor verwendeten Longpassfiltern nochmals. Insgesamt ist der Umbau auf Multimodefaser zur Führung des Detektionslichts von experimentellem Vorteil. Die weiteren Messungen wurden deshalb mit der Multimode Faser durchgeführt.

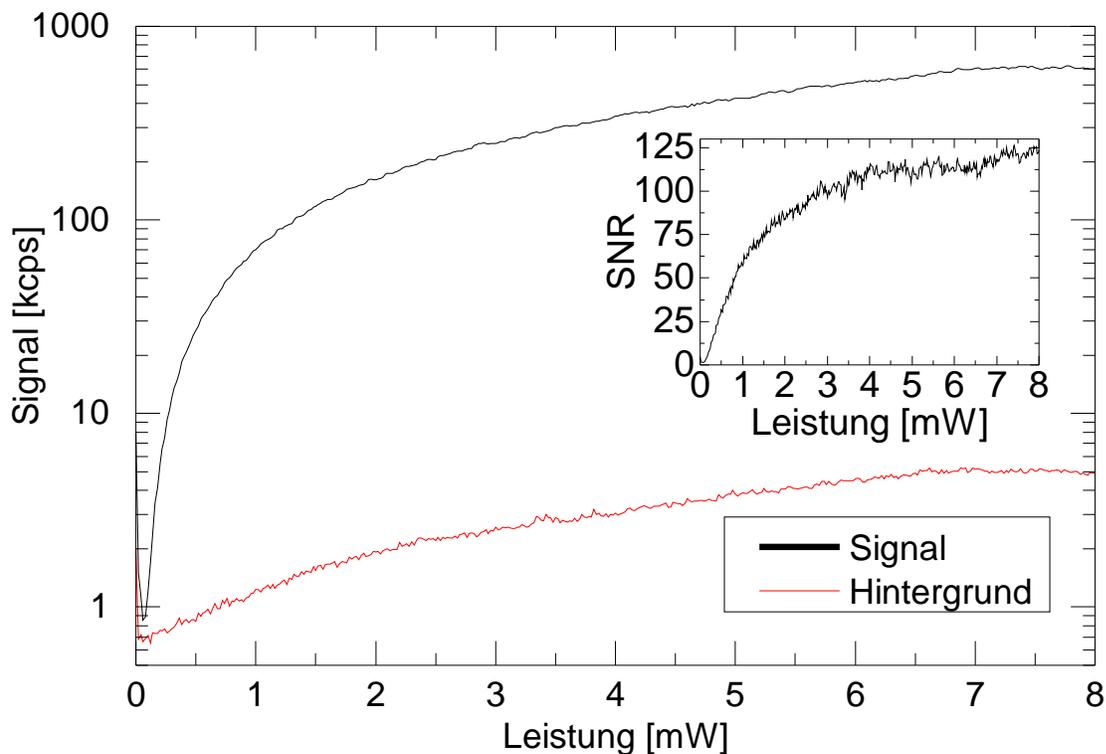


Abbildung 5.2: Messung der Sättigungskurve eines SiV-Zentrums mit einer Multimodefaser. Das Inset zeigt das Signal-zu-Rausch Verhältnis.

Neben der Anregung mit *nicht-resonantem* Licht lässt sich die Sättigung und das Signal-zu-Rausch-Verhältnis auch für die *resonante* Anregung der SiV-Zentren durchführen. Hierbei erfolgt, wie bereits in Abschnitt 3.2.4 erläutert, die Anregung mit Laserlicht, welches in die Wellenlänge des angeregten Übergangs aufweist und die Detektion auf dem phononischen Seitenband. Da aber das SiV-Zentrum einen niedrigen Huang-Rhys-Faktor aufweist (siehe Abschnitt 3.2.3), ist die Emission in das phononische Seitenband schwach im Vergleich zur ZPL-Emission. Deshalb reduziert sich die mögliche Zählrate im Gegensatz zur off-resonanten Anregung erheblich.

## 5.2 Polarisationsabhängige Untersuchung

Neben leistungsabhängigen Messungen ist auch die Untersuchung der Zählrate in Abhängigkeit von der Polarisation des Anregelichts von Bedeutung. Das SiV-Zentrum, welches bevorzugt linear polarisiertes Licht entlang zweier orthogonaler Achsen aussendet, bietet sich daher zum Beispiel für Anwendungen der Quantenkryptographie [67] oder der Kopplung an dielektrische Strukturen [68] an. Der experimentelle Aufbau lässt es noch nicht zu, die Polarisation der aufgesammelten Fluoreszenz zu untersuchen, sodass sich die folgenden Ergebnisse auf Untersuchung der Anregepolarisation beschränken. Dabei wird zunächst wieder die Position des Nanodiamanten im Fokus des Konfokalmikroskops durch Scans der Raumachsen optimiert. Dann wird mit dem 532 nm Dauerstrichlaser das Farbzentrum *nicht-resonant* angeregt und dabei die Polarisation des Laserlichts mit einer drehbaren  $\frac{\lambda}{2}$ -Platte schrittweise gedreht. Aufgrund der Symmetrie des Systems genügt bereits eine Drehung um  $180^\circ$ , um die Abhängigkeit vollständig zu vermessen. Wie auch bei den leistungsabhängigen Messungen wird pro Messpunkt wieder mindestens 750 ms gemessen, um mögliche Effekte durch die mechanische Instabilität des Kryostaten zu kompensieren. Die Messung erfolgt dann bei einer Anregeleistung unterhalb der Sättigung des jeweiligen Nanodiamanten. Für die Anregung mit dem 532 nm Laser wurden üblicherweise Leistungen zwischen 1 und 2 mW verwendet. Als charakteristisches Maß für die Stärke der Polarisationsabhängigkeit definiert man den Polarisationskontrast

$$V = \frac{F_{max} - F_{min}}{F_{max} + F_{min}} \quad (5.3)$$

wobei  $F_{max}$  bzw.  $F_{min}$  die maximale bzw. minimale Zählrate der jeweiligen Messung sind. Abbildung 5.3 zeigt exemplarisch die gemessene Zählrate in Abhängigkeit der Polarisation. In sämtlichen durchgeführten Messungen wurden keine Nanodiamanten mit Polarisationskontrast  $> 12\%$  gefunden. Dies entspricht der Erwartung für Nanodiamanten mit mehreren, zufälligen orientierten SiV-Fehlstellen. Wie auch bei der leistungsabhängigen Untersuchung ist die Orientierung der Dipolachse relativ zur Strahlachse das entscheidende Kriterium für die Kopplung von Anregelichtfeld und Fehlstellenzentrum.

## 5.3 Spektral aufgelöste Messungen

Auch bietet der Aufbau mittels des optional anschließbaren Monochromators die Möglichkeit, die Nanodiamanten detailliert auf ihr Spektrum zu untersuchen. Damit ist neben dem bereits vorhandenen Spektrometer, welches hauptsächlich zur schnellen Identifizierung von Nanodiamanten mit SiV-Zentren anhand der charakteristischen Emission der Zero-Phonon-Line dient, ein hochpräzises Messinstrument vorhanden, welches auch in Kombination mit Polarisations- und Leistungsmessungen benutzt werden kann.

Zunächst betrachten wir aber Spektren eines Nanodiamanten. Abbildung 5.4 zeigt ein mit dem Spektrometer aufgenommenes Spektrum. Die Anregeleistung mit dem 532 nm Laser betrug für die Messung 2 mW. Aufgrund der geringen Auflösung des Spektrometers ist nur einzelner, breiter Peak sichtbar, der sich aus der ZPL-Emissionen aller in der

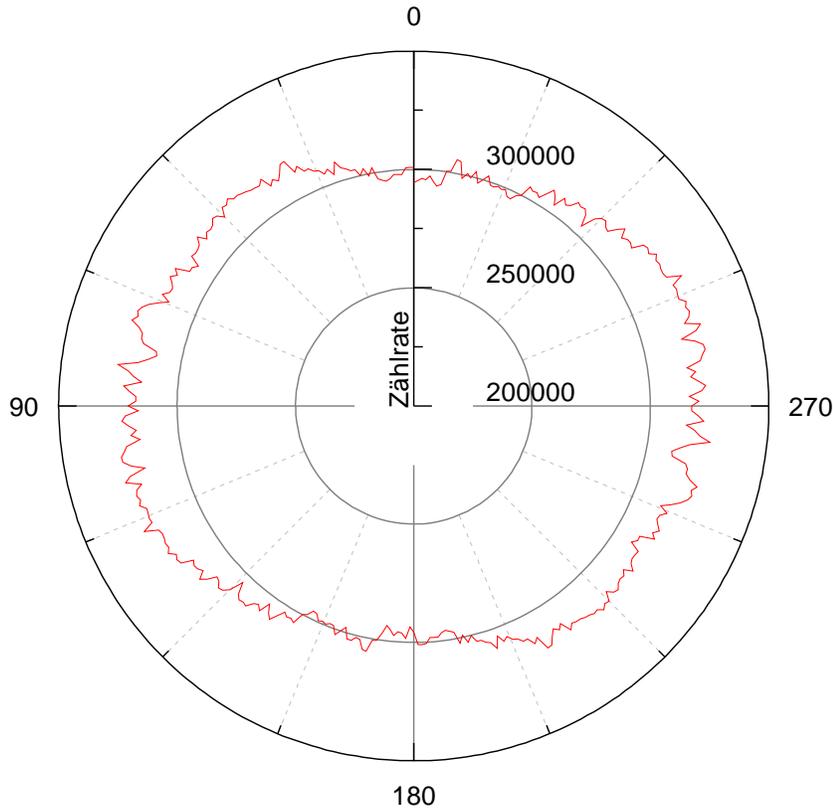


Abbildung 5.3: Messung der Polarisationsabhängigkeit eines Nanodiamants bei 1 mW Anregeleistung. Der Polarisationskontrast in dieser Messung beträgt etwa 5,3%.

Probe enthaltenen SiV-Zentren bildet. Das Maximum liegt bei 737,8 nm und Halbwertsbreite des Peaks beträgt 5,9 nm. Die Breite des Peaks ist hauptsächlich auf das geringe Auflösungsvermögen des Spektrometers, was auf 0,9 nm Halbwertsbreite bestimmte wurde [61], sowie die Anzahl der fluoreszierenden SiV-Zentren zurückzuführen. Die einzelnen Übergänge sind dabei noch inhomogen verbreitert, was sich mit Verspannungen im Nanodiamant erklären lässt

Als Nächstes ist auf Abbildung 5.5 ein mit dem Monochromator aufgenommenes Spektrum zu sehen. Auch hier ist die Emission aus der ZPL deutlich erkennbar. Die Anregeleistung betrug 2,5 mW. Es können vier verschiedene Bereiche erkannt werden, die sich durch unterschiedliche Breite, Intensität und Ausprägung unterscheiden. Eine Zuordnung zu den einzelnen Übergangslinien des SiV-Zentrums ist aber nicht möglich. Weiter ist auch die Aufteilung der vier großen Peaks in kleinere Unterspitzen gut zu sehen. Die Vielzahl der Spitzen ist der Menge an SiV-Fehlstellen im vermessenen Nanodiamant und der Verschiebung der Übergänge durch mechanische Spannung im Nanodiamant zuzuschreiben.

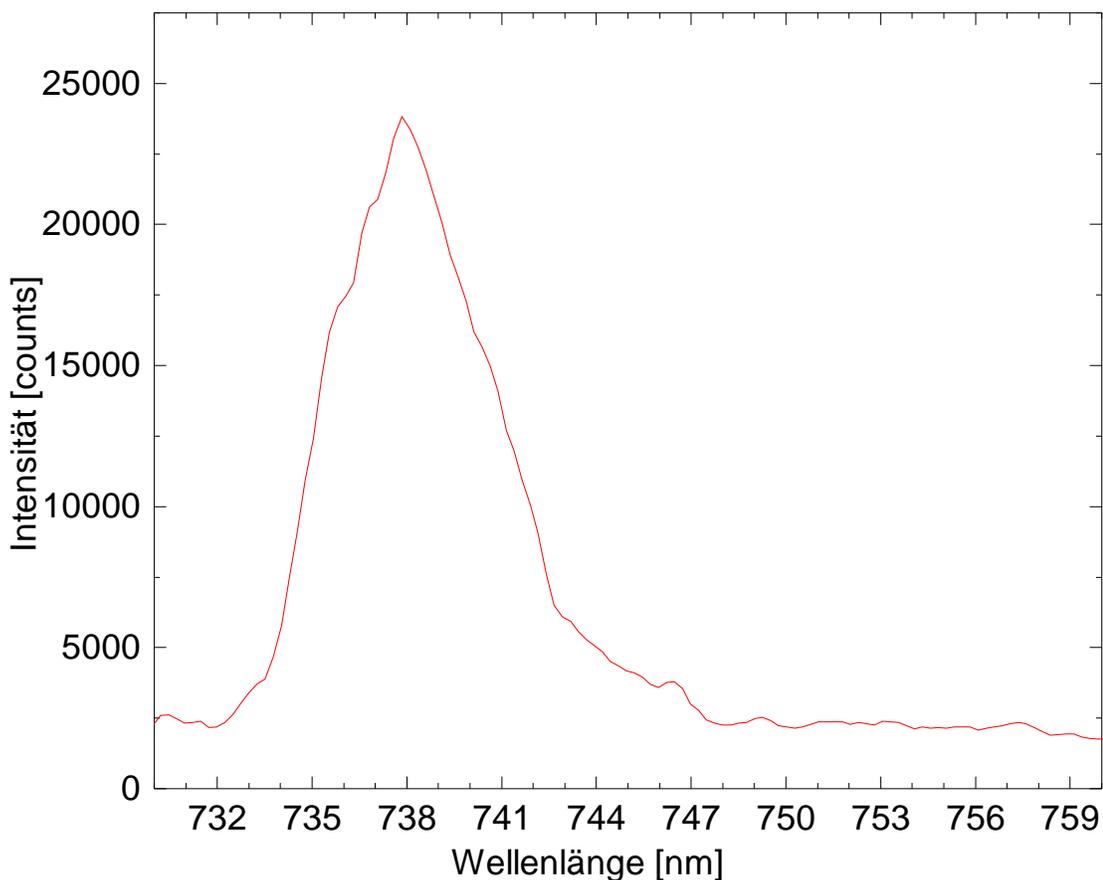


Abbildung 5.4: Mit dem Spektrometer aufgenommenes Spektrum eines Nanodiamanten.

Während die Details der Emission mit dem Monochromator also deutlich besser aufgelöst werden können, sind doch insgesamt zu viele einzelne Linien überlagert und verbreitert, um eine vollständige Zuordnung zu den einzelnen Übergängen zu ermöglichen.

Zusätzlich wurden Messreihen mit dem Monochromator und unterschiedlichen Anregeleistungen durchgeführt. Abbildung 5.6 zeigt exemplarisch das Ergebnis einer solchen Messung. Neben der typischen Struktur der Zero-Phonon-Line lässt sich auch der Einfluss der Anregeleistung auf das Emissionsspektrum erkennen. Während bei geringen Anregeleistung unter 2 mW sich nur wenige Details des Spektrums gegen das Hintergrundrauschen absetzen, ist im mittleren eine deutliche Struktur erkennbar, welche bei Anregeleistungen jenseits der Sättigung stark verwischen.

Weiter wurde die Zählrate für bestimmte Polarisationsrichtungen in Abhängigkeit der Wellenlänge des Fluoreszenzlichts vermessen. Dazu wurden in Messreihen für jede Polarisationsrichtung die Zählrate für einen kleinen Wellenlängenbereich aufgenommen. Die aufgesammelte Fluoreszenz wurde dazu im, in Abschnitt 4.4.2 erläuterten, Monochromator spektral gefiltert, und dann mittels APDs gemessen. Da durch den kleinen Spektralbereich die Intensität der Fluoreszenz sehr gering ist, wurde bis zu 30 Sekunden pro

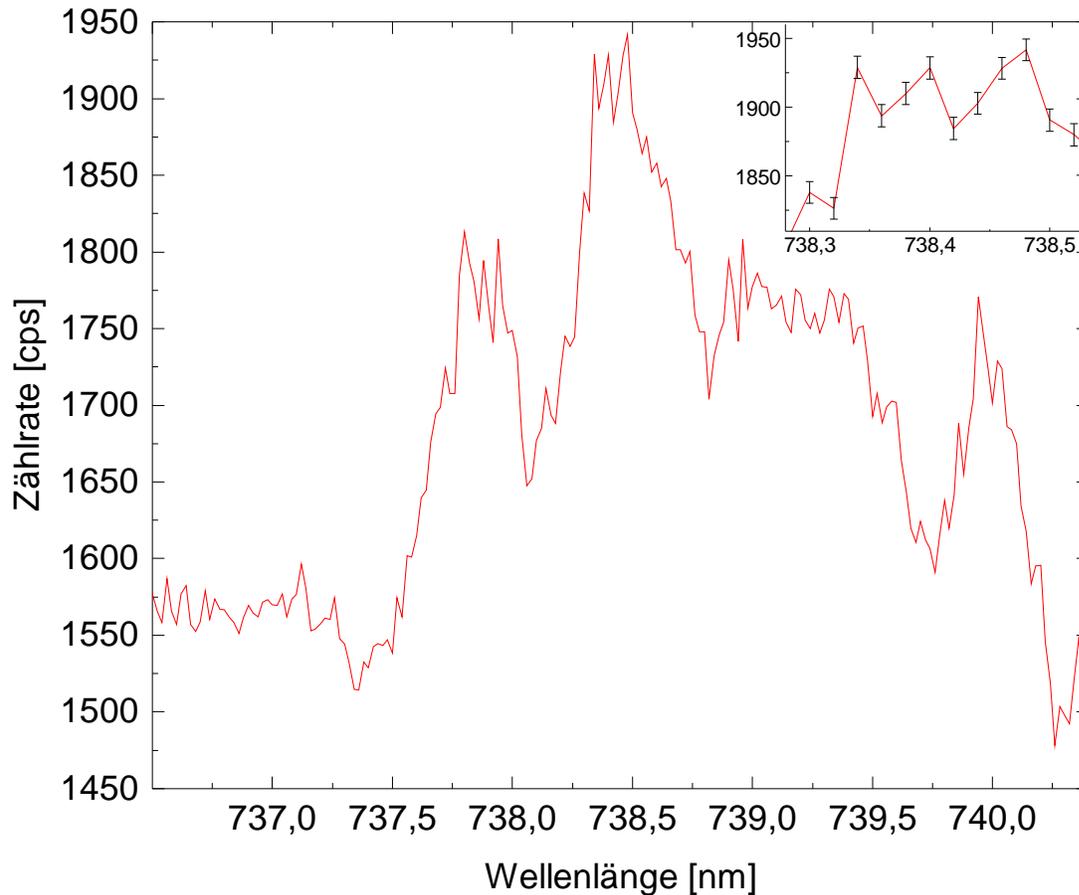


Abbildung 5.5: Durch den Monochromator aufgenommenes Spektrum eines Nanodiamanten bei 2,5 mW Anregeleistung. Die Integrationszeit betrug 30 Sekunden, die Schrittweite des Monochromators 20 pm. Das Inset zeigt einen Ausschnitt in vergrößerter Darstellung mit Fehlerbalken.

Messpunkt integriert. Abbildung 5.7 zeigt exemplarisch das Resultat einer solchen Messung, welche mit 2 mW Anregeleistung und 30 s Integrationszeit durchgeführt wurde. Darin ist wieder deutlich die Ausprägung der Zero-Phonon-Line zu erkennen. Zudem ist eine deutliche Veränderung des spektralen Emissionsprofils bei sich ändernder Polarisation des Anregungslichts zu erkennen. Dies ist auf die elektronische Struktur des SiV-Zentrums zurückzuführen, bei der die Dipole für die unterschiedlichen Übergänge gegeneinander um  $90^\circ$  gedreht sind. Dies führt zusammen mit der zufälligen Verteilung der SiV-Zentren-Orientierung und den unterschiedlich hohen Verspannungen der Farbzentren innerhalb des Nanodiamanten zur Verschiebung der Emissionsmaxima je nach Polarisation.

Eine Messung des Polarisationskontrasts bei resonanter Anregung einzelner Übergänge ist bisher nicht möglich, da noch keine Möglichkeit zum Ändern der Anregepolarisation für diesen Laser vorhanden ist. Zudem zeigt der dichroitische Strahlteiler für resonante Anregung stark polarisationsabhängige Eigenschaften, die noch weiterer Analyse bedürfen.

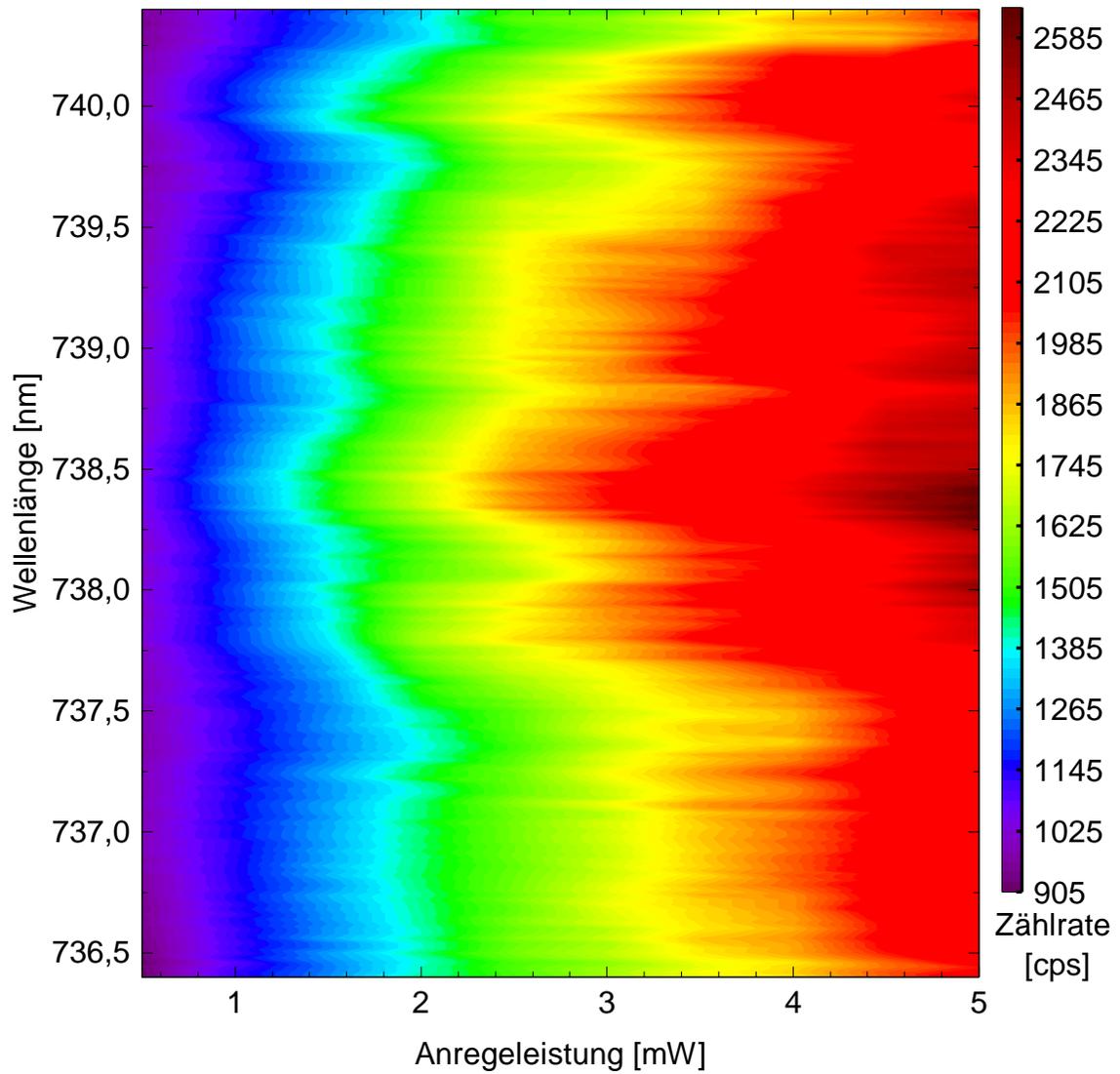


Abbildung 5.6: Mit Monochromator gemessene Spektren der ZPL eines Nanodiamanten in Abhängigkeit der Anregeleistung. Die Leistung wurde in 0,5 mW Schritten erhöht, der Monochromator in 20 pm Schritten gescannt. Die Integrationszeit pro Messpunkt betrug 30 Sekunden.

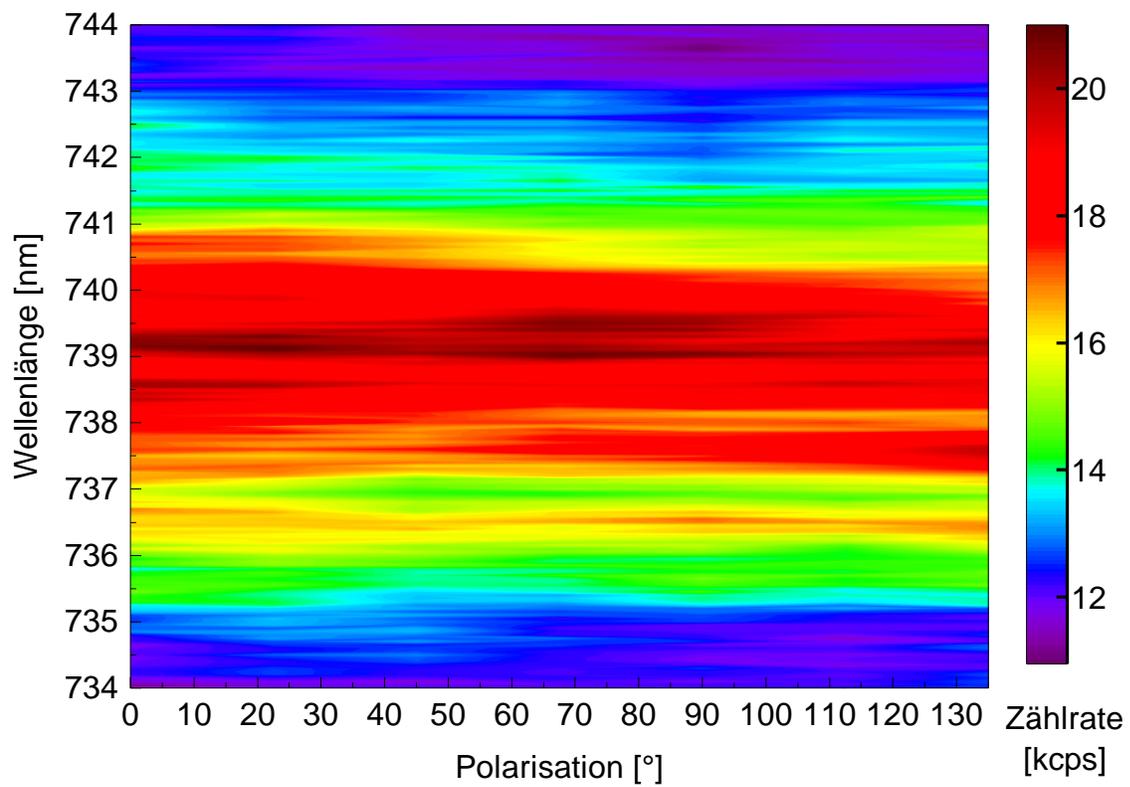


Abbildung 5.7: Messung des Spektrums der ZPL eines Nanodiamanten unter verschiedenen Anregepolarisationen.

## 5.4 Zeitaufgelöste Messung

Neben den bisher dargelegten Messungen wurde auch das zeitliche Fluoreszenzverhalten der SiV-Zentren in Nanodiamanten untersucht. Aufgrund der Einzelphotonenquellencharakteristik einzelner SiV-Zentren und des daraus resultierenden einzelnen Photonons pro Anregungs- und Relaxationszyklus kann die Messung des Fluoreszenzintensitätsverlaufs nicht mit einer Photodiode und einem Oszilloskop ermittelt werden. Deshalb ist man auf die zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung (*engl. time-correlated single photon counting*, TCSPC) angewiesen. Dabei wird in einem periodischem Zyklus die Anregung durch einen Laserpuls und der Nachweis des ersten Photons aufgezeichnet. Durch eine Vielzahl an Wiederholungen lässt sich dann ein Histogramm bilden, welches die zeitliche Verteilung der Photonendetektionen darstellt. Das zeitliche Abstrahlverhalten eines statistischen Zerfalls wie des angeregten Zustands eines SiV-Zentrums wird mit

$$S(t) = I_0 e^{-\frac{t}{\tau}} + y_0 \quad (5.4)$$

beschrieben. Der optimale Anregungspuls für eine solche Messung ist ein  $\delta$ -Puls, welcher gut mit einer schmalen Gaussfunktion angenähert werden kann:

$$R(t) = A e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{t-t_0}{\sigma} \right)^2} + y_0 \quad (5.5)$$

Hier beschreibt  $\sigma$  die Breite des Pulses,  $t_0$  den Schwerpunkt der Funktion,  $y_0$  die Dunkelzählrate der Detektoren und A einen Normierungsfaktor.

Abbildung 5.8 zeigt exemplarisch die exponentielle Zerfallsfunktion  $S(t)$  und den optischen Anregungspuls, der mit der Gaussfunktion  $R(t)$  beschrieben wird. zeigen die Funktionen und das Ergebnis der Faltung für verschiedene Breiten  $\sigma$  des Anregepulses.

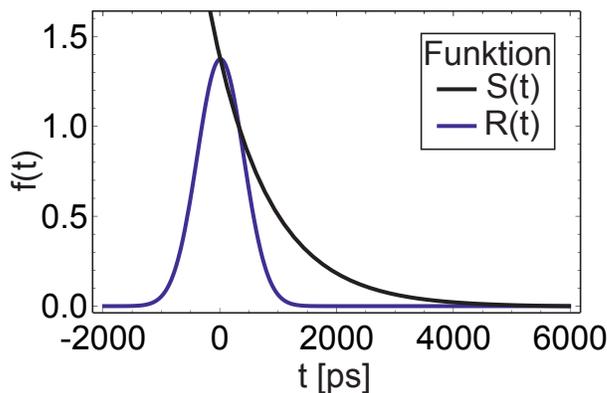


Abbildung 5.8: Ideale exponentielle Zerfallsfunktion  $S(t)$  und Gaussfunktion  $R(t)$ , die die Impulsantwort widerspiegelt

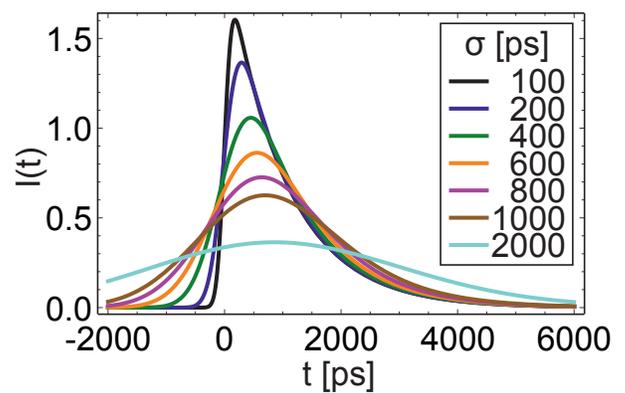


Abbildung 5.9: Faltung von Impulsantwort und Zerfallsfunktion für verschiedene Halbwertsbreiten  $\sigma$  der IRF

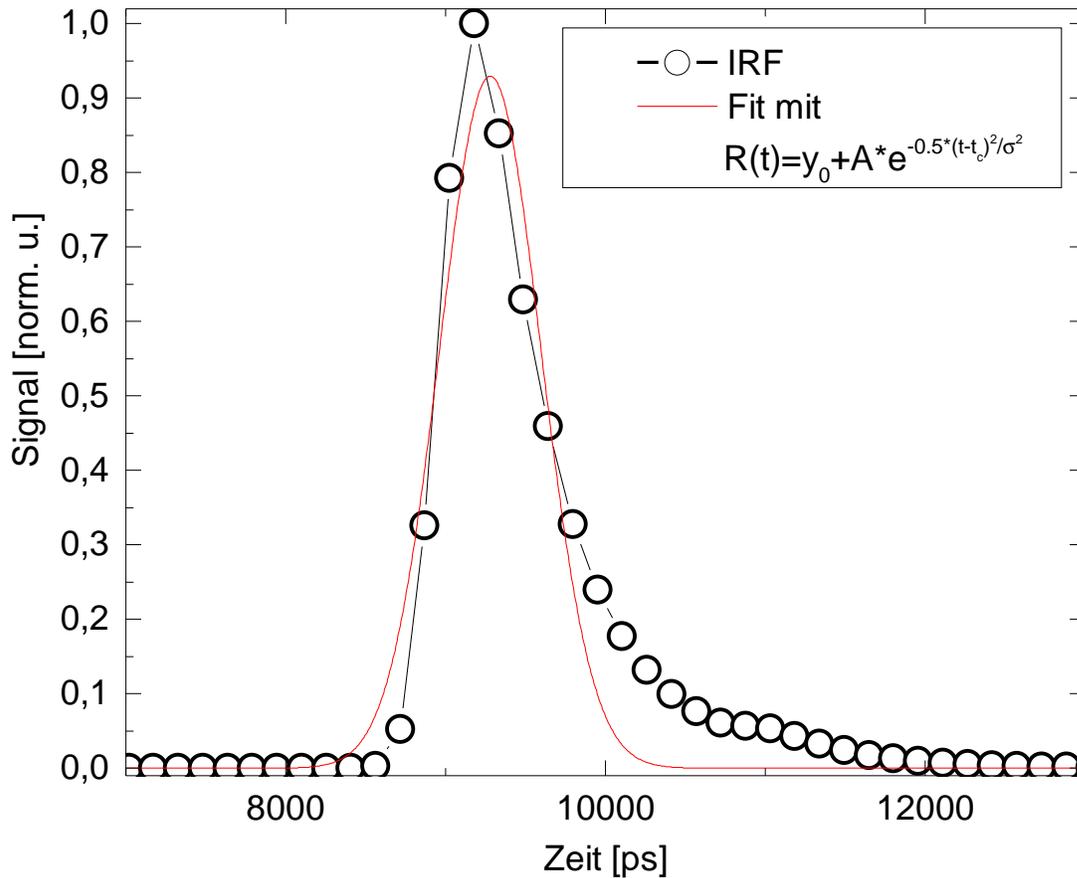


Abbildung 5.10: Angepasste Gaussfunktion an die gemessene IRF des Setups.

Zur mathematischen Beschreibung der erwarteten Antwort des Systems lässt sich das Signal als Faltung der beiden oben angegebenen Funktionen schreiben

$$I(t) = \int R(t - t') \cdot S(t') dt' \quad (5.6)$$

Führt man dieses Integral aus, so erhält man folgende Funktion:

$$I(t) = y_0 + A \cdot I_0 \cdot \exp\left(\frac{\sigma^2}{2\tau^2} - \frac{t}{\tau}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{\sigma^2 - t\tau}{\sqrt{2}\sigma\tau}\right) \quad (5.7)$$

wobei

$$\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x) = 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^\infty e^{-t^2} dt \quad (5.8)$$

die komplementäre Fehlerfunktion ist.

Mit den vorherigen Überlegungen kann man nun den Einfluss des Messaufbaus auf die Messung betrachten. Zunächst hat der Anregepuls im Messaufbau keine perfekte Form

einer Deltafunktion, wie man sie für optimale Anregung benutzen würde, sondern die in Abschnitt 4.6 gezeigte Pulsform. Auch würde man sogar für einen optimalen  $\delta$ -Anregepuls keine  $\delta$ -Funktion messen. Die gemessene Signal des Aufbaus gibt die sogenannte Impulsantwortfunktion (engl. *impulse response function*, IRF) aller an der Messung beteiligten Komponenten wieder.

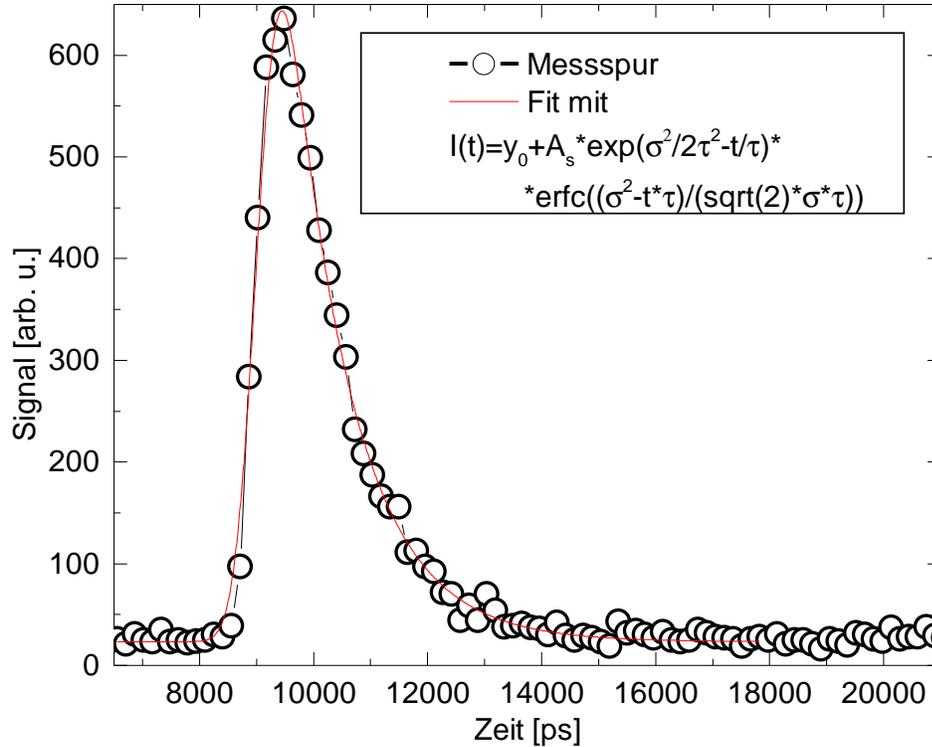


Abbildung 5.11: Gemessene Fluoreszenzlebensdauer eines Nanodiamanten und Fit mit der angepassten Zerfallsfunktion (5.7)

In diesem ist das zeitliche Verhalten der verwendeten Messelektronik enthalten, aber auch das Antwortverhalten der APDs, der Signalwandler zwischen den einzelnen Bauteilen im Messaufbau sowie die Ungenauigkeit der TDC-Einheit. In Abbildung 5.10 ist die gemessene IRF des Messaufbaus dargestellt. Zur Messung der IRF wird die Reflektion des Anregepulses an der Probenoberfläche ohne fluoreszierende Nanodiamanten gemessen. Die Breite der IRF lässt sich nun mittels Anpassung der Gaussfunktion an die Messdaten ermitteln. Als Wert für  $\sigma$  wurde anhand der Anpassung  $316 \pm 16$  ps ermittelt.

Abbildung 5.12 zeigt exemplarisch die Messung der Fluoreszenzlebenszeit von zwei verschiedenen Nanodiamant in Abhängigkeit der Polarisation des Anregelichts. Hierbei erfolgte die Detektion ohne spektrale Selektion der Emission, das heißt die Fluoreszenz der ZPL aller SiV-Zentren wurde detektiert, das übrige Spektrum wurde mit Hilfe eines Bandpassfilters herausgefiltert. Die gemessene Lebenszeit ist für alle Anregepolarisationen nahezu konstant. Dies entspricht den Erwartungen, da die Emission aller SiV-Zentren in den Nan-

odiamanten zum Ergebnis beitragen und daher nur geringen Schwankungen zu erwarten sind. Die größeren Messfehler bei bestimmten Richtungen sind den niedrigeren totalen Zählraten bei bestimmten Polarisationsrichtungen geschuldet. Für keinen der mit dieser Methode untersuchten Nanodiamanten konnte eine eindeutige Lebenszeitveränderung der gesamten ZPL aller SiV-Zentren für verschiedene Polarisierungen gefunden werden.

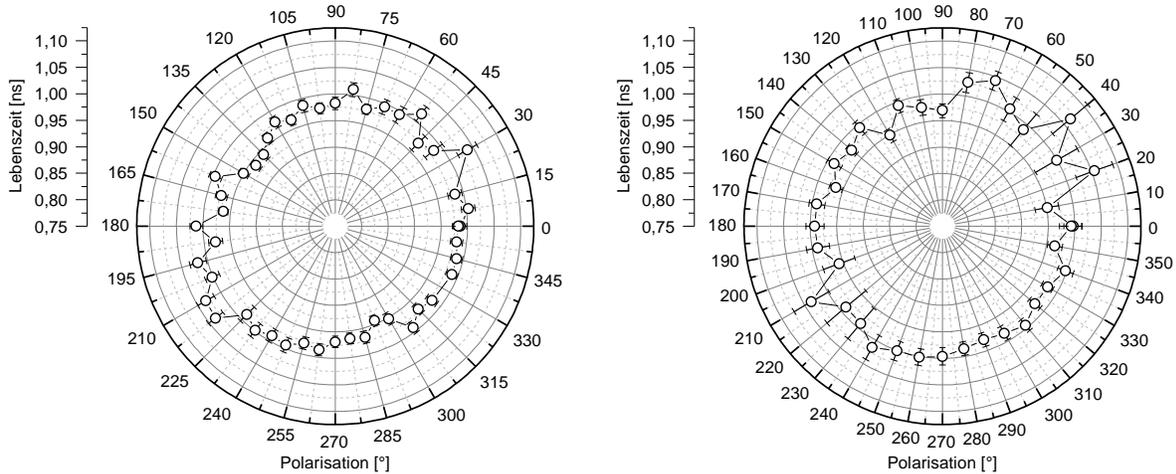


Abbildung 5.12: Gemessene Fluoreszenzlebenszeiten in Abhängigkeit der Polarisation des Anregellichts.

Abbildung 5.13 zeigt die Lebensdauer eines Nanodiamanten bei spektraler Filterung der Emission durch den Monochromator. Auffällig ist hierbei die signifikante Änderung der Lebensdauer in Abhängigkeit der Wellenlänge. Dies kann möglicherweise auf den Effekt der kollektiven Emission von verschiedenen, ununterscheidbaren SiV-Zentren zurückgehen [69]. Die Idee dabei ist, dass die einzelnen SiV-Zentren entlang der Kristallachsen im Nanodiamant ausgerichtet sind und es daher wahrscheinlich ist, dass es mehrere SiV-Zentren gibt, die die selbe Ausrichtung haben. Wenn dann auch die Übergangsenergien der einzelnen Zentren identisch sind, können die einzelnen Farbzentren optisch aneinander koppeln. Durch die Kopplung an dieses kollektive optische Feld erhöht sich die Abstrahlrate, was sich in einer geringeren Lebensdauer messen lässt. Dieser Effekt ist auch als kollektive Emission bekannt und eng mit dem Begriff der Superradianz verwandt [69].

In der spektral aufgelösten Lebenszeitmessung ist deutlich erkennbar, dass die Lebensdauer nicht direkt mit der Emissionsrate korreliert, also eine hohe Emissionsrate nicht zwingend eine kurze Lebensdauer zur Folge hat. Vielmehr ist die Lebenszeit bei 738 nm deutlich verringert. Dies ist genau der Punkt, an dem die ungestörte ZPL des SiV-Zentrums emittiert (siehe dazu Abschnitt 3.2.2). Bei anderen Emissionslinien ist die Übergangswellenlänge durch Störungen beziehungsweise Spannungen des Kristalls gestört. Diese bei 738 nm reduzierte Lebensdauer kann also aus kollektiver spontaner Emission entstehen, wenn die spektrale Überlappung der Übergänge sehr hoch ist. Dies ist bei den verschobenen Linien, welche durch Verspannung im Diamant entstehen und zudem dadurch auch verbreitert sind, nicht zu beobachten.

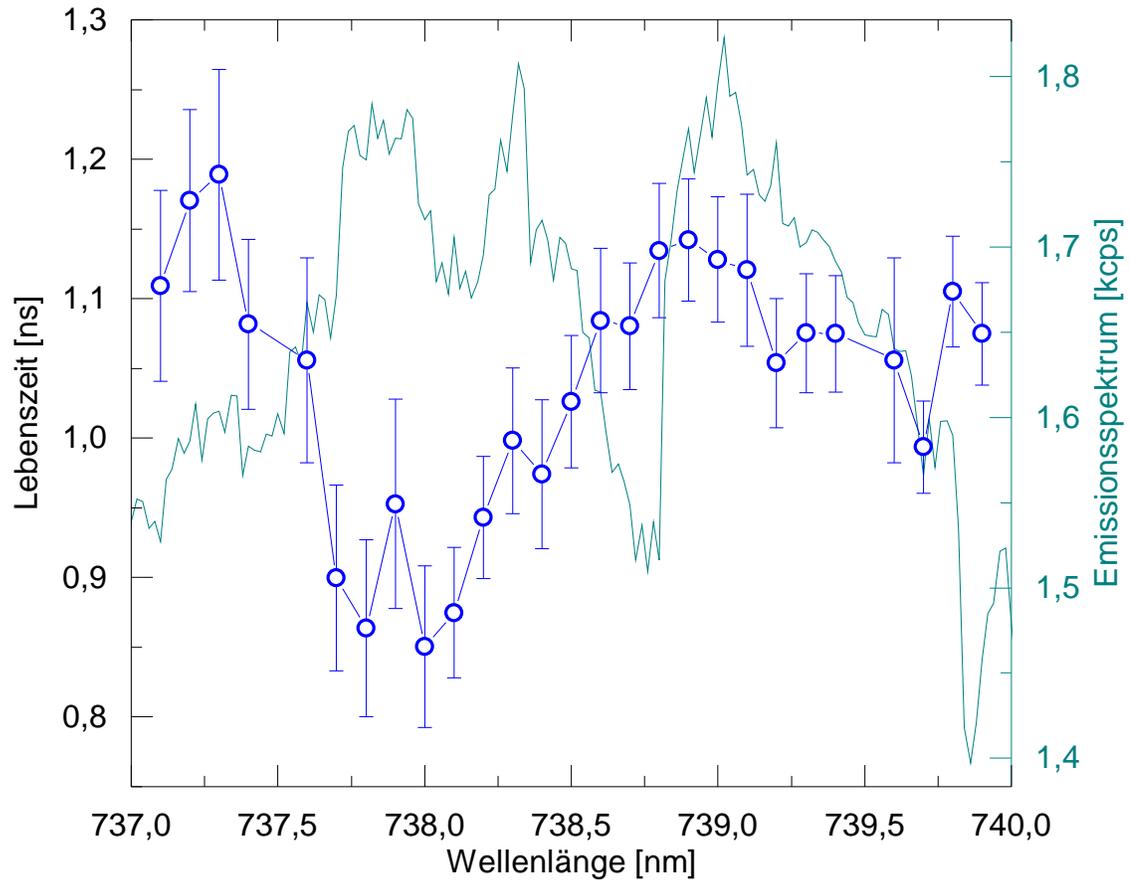


Abbildung 5.13: Der blaue Graph zeigt die gemessene Fluoreszenzlebensdauer eines Nanodiamanten in Abhängigkeit der Emissionswellenlänge. Die grüne Linie zeigt das Spektrum der ZPL des Nanodiamanten.

Eine solche kollektive Emission von Photonen ändert auch die Photonenstatistik und erzeugt super-poissonisches, also gebunchtes Licht [70]. Zum Nachweis dieses Bunchingeffekts wird die bereits in Abschnitt 3.2.6 erwähnte  $g^{(2)}$ -Funktion verwendet. Im Falle einer Kopplung der Einzelphotonenemitter untereinander erwartet man eine Erhöhung des Wert von  $g^{(2)}(\tau = 0) > 1$ .

Abbildung 5.14 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung am selben Nanodiamant, der auch für die Messung in Abbildung 5.13 verwendet wurde. Bei dieser ersten Kontrollmessung wurde der Monochromator wieder aus dem Detektionspfad entfernt, es ist also keine spektrale Filterung erfolgt. Als Ergebnis der spektral ungefilterten Messung ist festzuhalten, dass sich keine signifikante Änderung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung feststellen lässt.

Im Gegensatz dazu ist in Abbildung 5.15 die  $g^{(2)}$ -Funktion durch den Monochromator bei einer Wellenlänge von 738,0 nm mit einem Detektionsfenster von 0,1 nm zu sehen. Obwohl der Graph nur das erste vorläufige Ergebnis von spektral aufgelösten Korrelations-

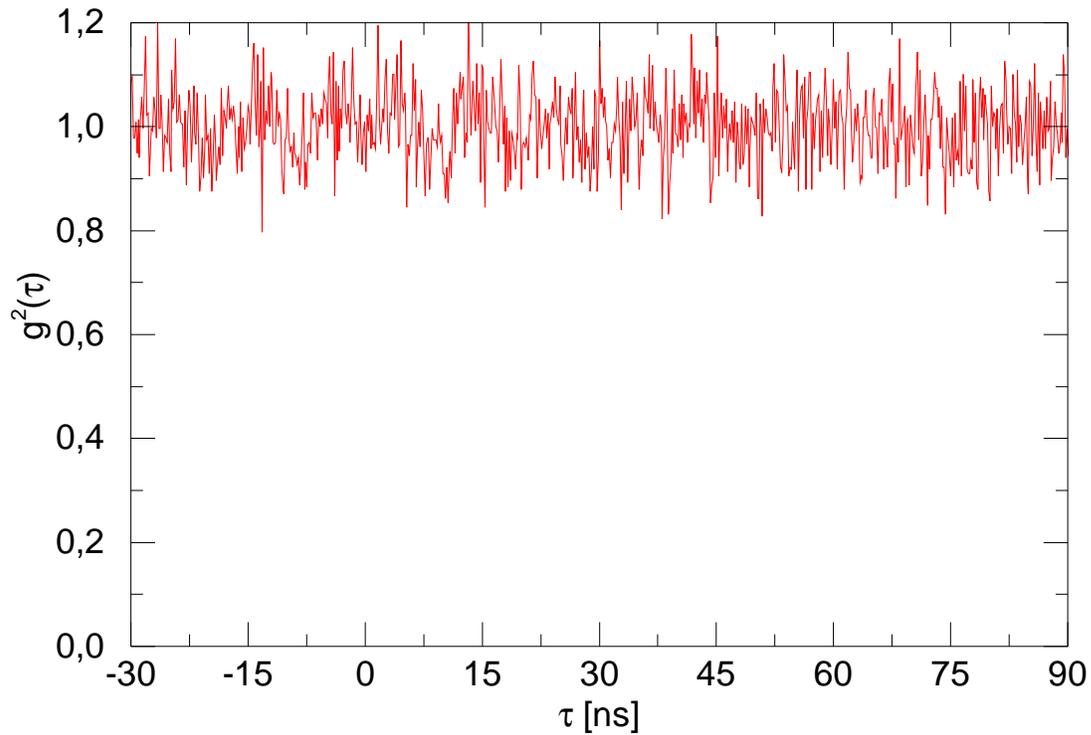


Abbildung 5.14: Messung der normierten  $g^{(2)}$ -Funktion des Nanodiamanten aus Abbildung 5.13.

messungen zeigt, ist bereits ein deutlicher Peak der Emission für eine Zeitdifferenz  $\tau = 0$  zu erkennen. Dies ist ein starker Hinweis auf Kopplung einzelner SiV-Zentren im Nanodiamant bei einer gemeinsamen Wellenlänge und zeigt, dass SiV-Zentren ein idealer Kandidat für ununterscheidbare, festkörperbasierte Einzelphotonenquellen sind.

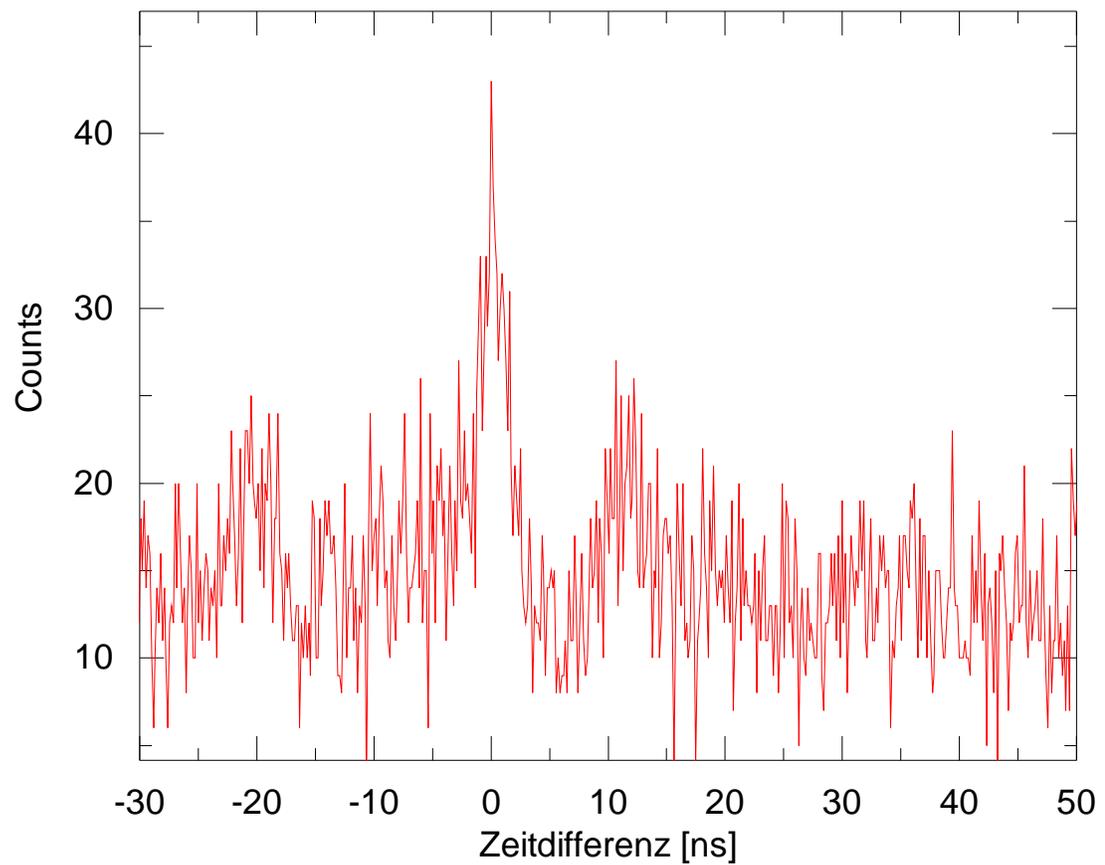


Abbildung 5.15: Nicht normierte Korrelationsmessung der ZPL-Fluoreszenz des Nanodiamanten aus Abbildung 5.13 durch den Monochromator bei einer Wellenlänge von 738,0 nm.



# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

### 6.1 Zusammenfassung

Mit den Untersuchungen, die im Lauf der Erstellung dieser Arbeit, durchgeführt wurden, konnten eine Reihe an neuen Ergebnissen über die vorhandenen Nanodiamanten und den enthaltenen SiV-Zentren gewonnen werden. Das Hauptaugenmerk der Arbeit lag auf der Untersuchung der Frequenzabhängigkeit der optischen Eigenschaften von SiV-Zentren. Hier wurden sowohl das polarisationsunabhängige Spektrum verschiedener Nanodiamanten untersucht, als auch die Abhängigkeit der spektralen Emission gegenüber der Polarisation des Anregelichts sowie die Anregeleistung. Dazu wurde im Verlauf der Arbeit der Monochromator zum bestehenden Aufbau hinzugefügt und die Detektion auf Multimode-Glasfasern umgebaut. Das Auflösungsvermögen und die Transmission des Monochromators wurden charakterisiert. Weiter wurde die Abhängigkeit der Fluoreszenzlebensdauer von Emissionswellenlänge der SiV-Zentren sowie der Polarisation des Anregelichts untersucht. Zudem wurde die Intensität der Fluoreszenzemission auf Korrelation untersucht, also die  $g^{(2)}$ -Funktion gemessen.

Auch ist im weiteren Verlauf die Möglichkeit zur resonanten Anregung der Probe im Experiment realisiert worden und der Aufbau um den entsprechenden Laser und die dazugehörigen Regelungselemente sowie ein Fabry-Pérot-Resonator als Frequenzreferenz erweitert worden. Damit wurde die Möglichkeit der resonanten Anregung eines SiV-Zentrums und Detektion der Fluoreszenz des phononischen Seitenbandes erfolgreich demonstriert sowie spektrometrische Messungen getätigt.

Während diese Ergebnisse mit resonanter Anregung erzielt wurden, gibt es weitere Ergebnisse aus Messungen mit nicht-resonanter Anregung. Dabei wurde die Emission einer Vielzahl von SiV-Zentren in Nanodiamanten spektroskopisch untersucht, die aufgrund ihrer Vielzahl und der spannungsbedingten Linienverbreiterung nicht einzelnen SiV-Zentren zugeordnet werden können. Bei einzelnen Nanodiamanten zeigt sich eine leichte Präferenz für bestimmte Polarisationsrichtungen, die auf einen erhöhten Anteil an SiV-Zentren, die in dieser Kristallrichtung orientiert sind, hindeutet. Die leistungsabhängigen Messungen zeigen eine Verbreiterung der Linien aufgrund der Sättigungsverbreiterung, die aber aufgrund

der Vielzahl an Linien nicht einzeln aufgelöst werden kann. Der Umbau auf Multimode-Glasfaser für die Detektion verbessert die Aufsammeleffizienz des Experiments erheblich und beschleunigt damit Messungen mit dem Monochromator deutlich, ohne an Signal-zu-Rausch-Verhältnis einzubüßen. Die dadurch erreichten, höheren Zählraten sind besonders für zeitlich gefilterte Messungen von großem Nutzen. Die Messungen der Fluoreszenzlebenszeit der gesamten ZPL eines SiV-Ensembles zeigen keine signifikanten Änderungen in Abhängigkeit der Polarisation, was in Übereinstimmung mit der Tatsache steht, dass die SiV-Zentren entlang dreier Raumrichtungen orientiert sind, die wiederum beliebig zum Betrachter liegen. Die Änderung der Lebenszeit in Abhängigkeit der Emissionswellenlänge kann mit spontaner kollektiver Emission erklärt werden, bei der eine Kopplung der einzelnen Emitter angenommen wird.

Weitere Verbesserungen der Möglichkeiten zur resonanten Anregung stehen noch aus. Hier ist insbesondere eine bessere Regulierung der Laserleistung bei verschiedenen Wellenlängen sowie eine Einstellung der Polarisation angedacht. Zusätzlich soll die Polarisation der Detektion wählbar sein. So ist es dann möglich, durch um  $90^\circ$  zur Anregungspolarisation gedrehte Polarisatoren das Licht des Anregelasers aus der Detektion herausfiltern zu können. Dadurch ist es möglich, die SiV-Zentren resonant anzuregen und statt auf dem schwach ausgeprägten Seitenband direkt auf der ZPL zu detektieren.

## 6.2 Ausblick

Farbzentren bieten sich durch ihre speziellen Eigenschaften als aussichtsreicher Kandidat für eine Vielzahl an Anwendungen an. Als Beispiel sei hier die Emission von einzelnen Photonen auch bei Raumtemperatur oder die Möglichkeit, Elektronen- und Kernspin optisch manipulieren und auslesen zu können, erwähnt. Für optische Anwendungen bietet sich hier insbesondere das SiV-Zentrum an, da es nur schwach an Phononmoden koppelt und durch seine hohe Abstrahlrate einen großen Einzelphotonenstrom erzeugt. Zusätzliche Ergebnisse können sich aus weiteren Experimenten gewonnen werden. So ist es eine polarisationsabhängige Vermessung der Photonenstatistik interessant, um kollektive Emission nachzuweisen [71]. In diesem Zusammenhang sind auch Proben mit definiertem Abstand und bekannter Ausrichtung zwischen den einzelnen SiV-Zentren interessant, um die auftretenden Ensembleeffekte experimentell analysieren zu können. Auch Untersuchungen an einzelnen SiV-Zentren bieten weiter Potential, so kann durch kohärente Streuung an einzelnen Farbzentren die natürliche durch die Übergangsrate bestimmte Linienbreite unterschritten werden [72], womit die Photonen noch weniger unterscheidbar sind.

Für weiterführende Anwendungen abseits von Laborbedingungen ist es aber auch erforderlich, dass das Anregelicht möglichst effizient zum Farbzentrum geleitet sowie die Emission wieder aufgesammelt wird. Hierfür bieten sich beispielsweise dielektrische Wellenleiterstrukturen an. Mittels eines Nanomanipulators wurde bereits erfolgreich ein Nanodiamant mit einem NV-Zentrum auf einer Nanoglasfaser positioniert und eine Effizienz der evaneszenten Kopplung zwischen Nanodiamant und Nanoglasfaser von  $\beta = 10\%$  gemessen [20]. Die Effizienz der Kopplung lässt sich durch verbesserte Strukturen wie spezifisch

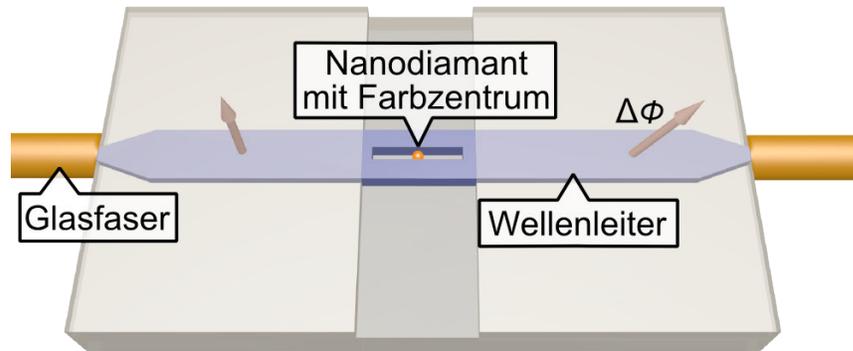


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung eines Nanodiamanten im Spalt eines dielektrischen Wellenleiters. Zum Farbzentrum resonantes Licht erfährt durch den Nanodiamanten einen Phasenschub  $\Delta\Phi$ .

designte dielektrische Wellenleiter steigern, deren Herstellung parallel zu dieser Arbeit entwickelt wurde [73][74]. Dabei erhofft man sich durch einen schmalen Schlitz im Wellenleiter (siehe Abbildung 6.1), in welchen ein Nanodiamant mit SiV-Zentrum platziert werden soll, eine Kopplungseffizienz von mehr als  $\beta = 65\%$  über einen weiten spektralen Bereich[75]. Wenn sich eine solch hohe Kopplungseffizienz erreichen lässt, sind in Verbindung mit der schmalbandigen Emission kryogener SiV-Zentren vielfältige Anwendungen im Bereich der Absorptions-, Fluoreszenz- und Phasenspektroskopie möglich [76] [77]. Auch ließen sich mit einem solchen System chip-basierte Photon-Photon- und Atom-Photon-Kopplungen realisieren, die die durch das SiV-Zentrum entstehende optische Nichtlinearität ausnutzen [78]. Solche Schnittstellen sind besonders für die Weiterentwicklung von Quanteninformationssystemen von großer Bedeutung. In diesem Fall ermöglicht ein einzelnes SiV-Zentrum im Wellenleiter einen Phasenschub resonanten Lichts um bis zu  $\pi$  (in Abbildung 6.1 schematisch dargestellt). Damit ließe sich ein Einzelphotonen-Quantengatter darstellen, wie es in der Quanteninformationstechnik verwendet wird [78]. Auch wäre eine Verwendung als Quanten-Transistor [79] möglich, an welchem einzelne Photonen reflektiert werden, während paarweise auftreffende Photonen passieren können [6].

Insgesamt versprechen SiV-Zentren in Kombination mit Wellenleiterstrukturen also eine Vielzahl an möglichen Anwendungsmöglichkeiten, die in kommenden Quanteninformationssystemen von Bedeutung sein können. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die begonnene grundlegende Charakterisierung der Nanodiamanten mit fluoreszierenden SiV-Zentren fortgesetzt und das Experiment um mehrere Komponenten erweitert. Der Weg für weitere erfolgreiche Experimente an SiV-Zentren in Diamantnanokristallen ist damit bereitet.



# Anhang A

## Fabry-Pérot-Resonator

Ein optischer Resonator, wovon ein Fabry-Pérot-Resonator eine Spezialform ist, bestehen im Allgemeinen aus zwei oder mehr (teil-)reflektierenden Spiegeln, die das Licht im Inneren auf einer möglichst geschlossenen Bahn umherlenken. Dabei überlagert sich das Lichtfeld des eingestrahlichten Lichts mit dem an Spiegeln reflektiertem Licht.

Ein Fabry-Pérot-Resonator besteht aus zwei koaxialen Spiegeln. Abbildung A.1 zeigt den schematischen Aufbau eines ebenen Resonators mit einfallenden, reflektierten und transmittierten Strahlen. Betrachtet man eine ebene einfallende Welle an zwei Grenzflächen, so lässt sich der Resonator als eindimensionales Problem mit einem skalarem Feld beschreiben.  $E_{in}$  stellt die einfallende Welle da, welche zu Teilen im Resonator läuft.  $R_1$ ,

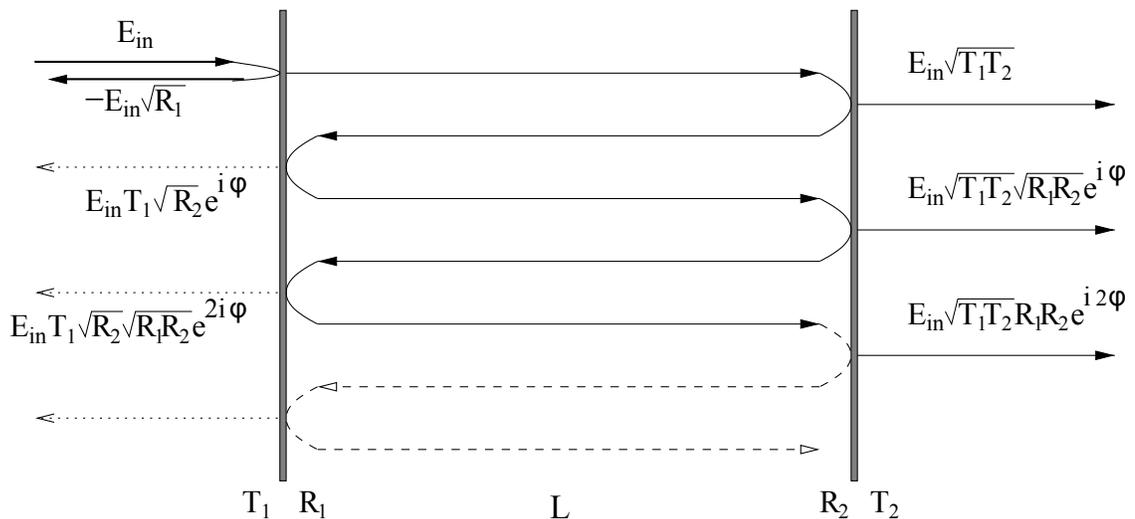


Abbildung A.1: Schema des Feldes eines einfachen, planaren Resonators. Zur besseren Darstellung sind die einzelnen Wegstrecken versetzt abgebildet.

$R_2$ ,  $T_1$  und  $T_2$  bezeichnen die Reflektivität bzw. Transmission der jeweiligen Spiegel und

$L$  den Abstand.  $\Phi$  bezeichnet die Umlaufphase, die mit dem Wellenvektor  $k = n\frac{\omega}{c}$  die longitudinalen Moden definiert:

$$E_t = E_{\text{in}} \frac{T}{1 - Re^{i\Phi}}, I_t \propto |E_t|^2 = E_{\text{in}}^2 \frac{T^2}{(1 - R)^2} \frac{1}{1 + \frac{4R}{(1-R)^2} \sin^2\left(\frac{\Phi}{2}\right)} \quad (\text{A.1})$$

mit  $R = \sqrt{R_1 R_2}$ ,  $T = \sqrt{T_1 T_2}$  und  $\Phi = 2kL$ . Maximale Transmission erhält man dann, wenn  $\Phi = 2\pi j$ ,  $j \in \mathbb{N}$ . Für den idealen, verlustfreien Fall mit  $R + T = 1$  ist die Transmission dann gleich der eingestrahnten Intensität. So sieht man also, dass die Länge  $L$  des Resonators die Frequenzen mit maximaler Transmission bestimmt:

$$\omega = 2\pi \frac{c}{2nL} j \quad (\text{A.2})$$

Man bezeichnet diese Größe als freien Spektralbereich eines Resonators, welche den Abstand  $\Delta\lambda$  zwischen zwei benachbarten Transmissionsmaxima definiert. Er hängt von der Länge  $L$  des Resonators und dem Brechungsindex  $n$  des Mediums im Inneren des Resonators ab und wird für gewöhnlich in Hz angegeben.

$$\Delta f = \frac{c}{2nL} = \frac{299792458 \frac{\text{m}}{\text{s}}}{2 \cdot 1 \cdot 0,1 \text{ m}} \approx 1,5 \text{ GHz} \quad (\text{A.3})$$

Für den im Versuch verwendeten Resonator ergibt sich also ein freier Spektralbereich von 1,5 GHz.

Weiter definiert die sogenannte Finesse  $\mathcal{F}$  das Verhältnis aus Abstand zweier Transmissionsmaxima  $\Delta\lambda$  zur Halbwertsbreite eines Maximums  $\delta\lambda$  in Abhängigkeit der Reflektivität  $R$  der Spiegel. Die Finesse lässt sich aus dem Finesskoeffizienten  $F$  bestimmen, welcher definiert ist als:

$$F = \frac{4R}{(1 - R)^2} \quad (\text{A.4})$$

Für die Finesse  $\mathcal{F}$  ergibt sich somit:

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta\lambda}{\delta\lambda} = \frac{\pi}{2 \arcsin\left(\frac{1}{\sqrt{F}}\right)} \quad (\text{A.5})$$

Diese Formel lässt sich noch für Reflektivitäten  $R > 0,5$  vereinfacht abschätzen:

$$\mathcal{F} \approx \frac{\pi\sqrt{F}}{2} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1 - R} \quad (\text{A.6})$$

Experimentell wird eine Finesse von  $13,37 \pm 6,5$  bestimmt. Dies ist in guter Übereinstimmung zum erwarteten Wert für Spiegel mit etwa 80% Reflektivität.

Die vorher verwendete Näherung zur Berechnung der longitudinalen Moden ist jedoch nicht ausreichend, um den Strahl im Inneren eines realen Resonators mit gekrümmten Spiegeln zu beschreiben, da ein Resonator in der vereinfachten, planaren Anordnung durch die endliche Krümmung der Wellenfronten des propagierenden Gaußstrahles nicht stabil ist.

Das heißt, der Strahl wird sich nach den Regeln der Gaußschen Strahlenoptik aufweiten und die Intensität mit steigender Entfernung vom Strahlwaist nicht mehr nahe um die Strahlachse konzentriert sein.

Die Wellenfront muss am Spiegel jeweils die Krümmung des Spiegels aufweisen, damit das Feld exakt in sich selbst reflektiert wird und eine stehende Welle ausbildet.

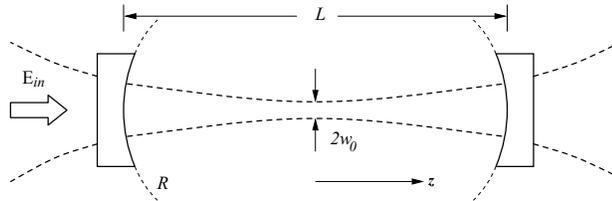


Abbildung A.2: Schema eines Resonators mit gekrümmten Spiegeln.  $R$  ist der Krümmungsradius der Spiegel,  $L$  der Abstand zwischen den Spiegelflächen.

Ein Resonator mit zwei Spiegeln lässt sich auch durch eine Serie äquidistanter dünner Linsen gleichen Krümmungsradius darstellen. Unter der Annahme, dass die Linsen bzw Spiegel an den Resonatorenenden die gleiche Krümmung aufweisen, genügt auch bereits ein einfaches Passieren des Strahls durch eine Linse des Systems anstelle mehrerer Durchläufe, um das System korrekt wiederzugeben. Dies lässt sich ausnutzen, um die Stabilitätsbedingung für Resonatoren auszurechnen. Mit einer Transfermatrix  $M$

$$M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

wird die Abbildung eines optischen Elements dargestellt. Nach  $n$  Durchläufen erhält man also  $M^n$  als Abbildung. Diagonalisiert man nun  $M$  zu

$$M = P \begin{pmatrix} x_1 & 0 \\ 0 & x_2 \end{pmatrix} P^{-1} \quad (\text{A.8})$$

so wird aus einem Anfangsstrahl  $s_0$  mit

$$s_0 = \begin{pmatrix} x_0 \\ \theta_0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.9})$$

nach  $n$  Resonatordurchläufen ein Strahl  $s_n$

$$s_n = P \begin{pmatrix} x_1^n & 0 \\ 0 & x_2^n \end{pmatrix} P^{-1} s_0 \quad (\text{A.10})$$

Stabilität setzt nun voraus, dass  $|x_{1,2}| \leq 1$ , was zusammen mit den Eigenschaften  $x_1 x_2 = 1$  und  $x_1 + x_2 = A + D$  der Diagonalmatrix zur Stabilitätsbedingung führt:

$$0 \leq \frac{A + D + 2}{4} \leq 1 \quad (\text{A.11})$$

Für einen Gausstrahl mit komplexen Parameter  $q_1$  lässt sich die Abbildung durch eine Linse direkt ausrechnen:

$$\frac{1}{q_2} = \frac{1}{q_1 + d} - \frac{1}{f} \quad (\text{A.12})$$

Wenn man nun weiter von einer Serie von Linsen ausgeht, welche den Strahl immer wieder auf sich selbst abbilden, so muss man verlangen, dass  $q_1 = q_2 = q$  für diese und damit alle folgenden Abbildungen gelten muss. Daraus erhält man eine quadratische Gleichung für den Strahlparameter  $q$ :

$$\frac{1}{q^2} + \frac{1}{fq} + \frac{1}{df} = 0 \quad (\text{A.13})$$

Hieraus erhält man

$$\frac{1}{q} = -\frac{1}{2f} \pm i\sqrt{\frac{1}{fd} - \frac{1}{4f^2}} \quad (\text{A.14})$$

wobei man nur die Wurzel berücksichtigt, die einen reellen Strahldurchmesser ergibt. Imaginäre Strahldurchmesser sind ein Zeichen für eine instabile Resonatorkonfiguration.

Hieraus lassen sich zusammen mit der gängigen Beschreibung der Strahlparameter

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - i\frac{\lambda}{\pi\omega^2} \quad (\text{A.15})$$

die Taille errechnen:

$$\omega^2 = \left(\frac{\lambda R}{\pi}\right) \frac{1}{\sqrt{2\frac{R}{d} - 1}} \quad (\text{A.16})$$

Um nun die Taille in der Mitte des Resonators zu erhalten setzt man noch  $z = \frac{d}{2}$  in

$$\frac{\lambda z}{\pi\omega_0^2} = \frac{\pi\omega^2}{\lambda R} \quad (\text{A.17})$$

und erhält damit

$$\omega_0^2 = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{d(2R - d)} \quad (\text{A.18})$$

Im Fall der konfokalen Konfiguration mit  $R = d$  vereinfacht sich dies zu

$$\omega_0^2 = \frac{\lambda R}{2\pi} \quad (\text{A.19})$$

Der Radius der Strahltaile der Resonatormode ist also für den im Experiment verwendeten Resonator:

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{\lambda R}{2\pi}} = \sqrt{\frac{737 \cdot 10^{-9} \text{ m} \cdot 0,1 \text{ m}}{2\pi}} \approx 1,083 \cdot 10^{-4} \text{ m}. \quad (\text{A.20})$$

Zur Anpassung der eingestrahnten Mode wird eine dünne Sammellinse mit Brennweite  $f$  vor den Resonator gesetzt, welche den Strahl in der Mitte des Resonators auf die errechnete Weite fokussiert.

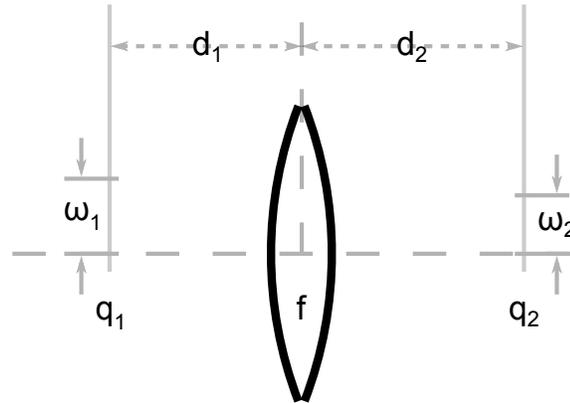


Abbildung A.3: Abstände und Parameter für eine Abbildung durch eine dünne Linse

Allgemein verwendet man das *ABCD*-Gesetz

$$q' = \frac{Aq + B}{Cq + D} \quad (\text{A.21})$$

zur Beschreibung der Abbildungen von optischen Bauteilen, welches aus der paraxialen geometrischen Optik bekannt ist. Aus den Strahlparametern  $q_{1,2}$  für die beiden anzupassenden Strahlen am Faserauskoppler und Eingangsspiegel lassen sich die benötigten Abstände errechnen:

$$q_1 = i\pi\omega_1^2/\lambda, \quad q_2 = i\pi\omega_2^2/\lambda \quad (\text{A.22})$$

Setzt man diese Werte in (A.12) ein und setzt die Imaginärteile gleich, so erhält man

$$\frac{d_1 - f}{d_2 - f} = \frac{\omega_1}{\omega_2} \quad (\text{A.23})$$

Ebenso geht man für die Realteile vor:

$$(d_1 - f)(d_2 - f) = f^2 - f_0^2, \quad f_0 = \pi\omega_1\omega_2/\lambda \quad (\text{A.24})$$

wobei man  $f_0$  als die charakteristische Länge bezeichnet. Beliebige Linsen mit  $f > f_0$  können zur Anpassung verwendet werden.

Die Anpassung im experimentellen Aufbau erfolgte erst nach erfolgter Montage des Faserkopplers, der das Licht zum Resonator transportiert, woraufhin sich der Parameterraum zur Modenanpassung reduziert. Eine mittels Software vorgenommene Optimierung des Strahlverlaufes ergibt für die vorhandene Linse mit  $f = 10$  cm einen Abstand von 22,8 cm nach der Kollimationslinse des Auskopplers. Damit wird ein theoretischer Strahlüberlapp von 99,6% erreicht.



# Anhang B

## Monochromator

Ein Monochromator nutzt wie auch ein Spektrometer den Interferenzeffekt von reflektiven, periodischen Linien in einem optischen Gitter.

Die Interferenzbedingung ist hierbei gegeben durch:

$$m\lambda = d(\sin(\alpha) + \sin(\beta)) \quad (\text{B.1})$$

wobei  $m$  die Beugungsordnung bezeichnet,  $d$  den Abstand zweier Gitterlinien und  $\alpha$  und  $\beta$  die Winkel der Strahlen (siehe Abbildung B.1). Grundsätzlich wird die Intensität des einfallenden Strahls auf die verschiedenen Beugungsordnungen des Gitters verteilt. Durch

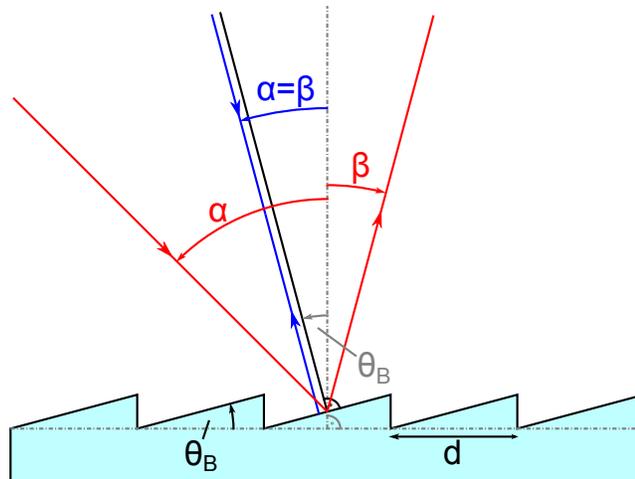


Abbildung B.1: Schematische Darstellung der Struktur eines Blaze-Gitters.  $d$  ist der Abstand zwischen 2 Linien,  $\theta_B$  der Blaze-Winkel.

Nutzung eines sogenannten Blaze-Gitters, welches eine um den Winkel  $\theta_B$  gekippte Reflektionssebene aufweist, lässt sich das Maximum des Beugungseffekts jeder einzelnen Gitterlinie mit einer bestimmten Ordnung (normalerweise der ersten Ordnung) der Interferenz des Gitters überlagern. Die Bedingung zur Überlagerung der Maxima ist gegeben durch:

$$\theta_B = \frac{\alpha + \beta}{2} = \frac{\alpha}{2} + \arcsin\left(\frac{m\lambda}{d} - \sin \alpha\right) \quad (\text{B.2})$$

Für kleine Ablenkwinkel  $\theta_B$  in der sogenannten Littrow-Anordnung vereinfacht sich das mit  $\alpha \approx \beta = \theta_B$  zu

$$m\lambda = 2d \sin \alpha \quad (\text{B.3})$$

$$\theta_B = \arcsin\left(\frac{m\lambda}{2d}\right) \quad (\text{B.4})$$

$$(\text{B.5})$$

So ergibt sich ein Blazewinkel für das verwendete Gitter von

$$\theta_B = \arcsin\left(\frac{1 \cdot 737 \text{ nm}}{2 \cdot 1200^{-1} \text{ mm}}\right) = 26,24^\circ$$

Die Dispersionsbedingungen des Gitters errechnet man anhand der Interferenzbedingung des Gitters (siehe Formel (B.1)):

$$d \cdot \cos \beta \, d\beta = m \, d\lambda \quad (\text{B.6})$$

Die Winkeldispersion gibt an, über welchen Winkelbereich  $d\beta$  sich der Wellenlängenbereich  $d\lambda$  erstreckt.

$$\frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{m}{d \cos \beta} \quad (\text{B.7})$$

Die Lineardispersion gibt die lateralen Bereich  $dx$  an, über welchen sich der Wellenlängenbereich  $d\lambda$  in einer Entfernung  $f$  ausbreitet.

$$dx = f \, d\beta = f \frac{m}{d \cos \beta} \, d\lambda \quad (\text{B.8})$$

$$\frac{dx}{d\lambda} = f \frac{m}{d \cos \beta} \quad (\text{B.9})$$

Weiter lässt sich das Auflösungsvermögen des Gitters über das Rayleigh-Kriterium bestimmen, welches besagt, dass das Beugungsmaximum einer Wellenlänge mindestens in das erste Minimum der anderen Wellenlänge fallen muss, um die sie unterscheiden zu können.

Für zwei Wellenlängen  $\lambda_1 = \lambda$  und  $\lambda_2 = \lambda + \Delta\lambda$  ergibt sich daher mit  $N$  als die Anzahl der beleuchteten Linien für das Minimum erster Ordnung:

$$1. \text{ Minimum von } \lambda : \frac{m\lambda}{d} + \frac{\lambda}{Nd} \quad (\text{B.10})$$

Für das Beugungsmaximum erster Ordnung ergibt sich folglich:

$$1. \text{ Maximum von } \lambda + \Delta\lambda : \frac{m(\lambda + \Delta\lambda)}{d} \quad (\text{B.11})$$

Die Anwendung des Rayleigh-Kriteriums bedingt dann die Beziehung:

$$\frac{m\lambda}{d} + \frac{\lambda}{Nd} = \frac{m(\lambda + \Delta\lambda)}{d} \quad (\text{B.12})$$

Dies vereinfacht sich schließlich zu:

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda}{Nm} \quad (\text{B.13})$$

Unter Berücksichtigung der Verkipfung des Gitters gegenüber dem einfallenden Strahl kann man nun eine Grenze für den maximalen Strahldurchmesser  $S(\lambda)$  errechnen, welcher noch vollständig durch das Gitter abgebildet werden kann, sowie das Auflösungsvermögen in Abhängigkeit des Strahldurchmessers  $S(\lambda)$ . Für das im Experiment verwendete Gitter mit einer Abmessung von 50x50 mm ( $S_0 = 50$  mm) mit einem auf das Gitter eingestrahlten Strahl mit 30mm Durchmesser ergibt sich folglich:

$$S(\beta) = \frac{S_0}{\cos\beta} \quad (\text{B.14})$$

Abbildung B.2 zeigt das theoretische Auflösungsvermögen in Abhängigkeit vom Strahldurchmesser. Das theoretisch maximal erreichbare Auflösungsvermögen  $\Delta\lambda$  errechnet sich folglich zu:

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda}{Nm} = \frac{\lambda}{m \frac{S_0(\beta)}{d \cos\beta}} = \frac{737 \text{ nm}}{\frac{30 \text{ mm}}{\cos(26,24^\circ) 1200 \text{ mm}^{-1}}} \approx 23 \text{ pm} \quad (\text{B.15})$$

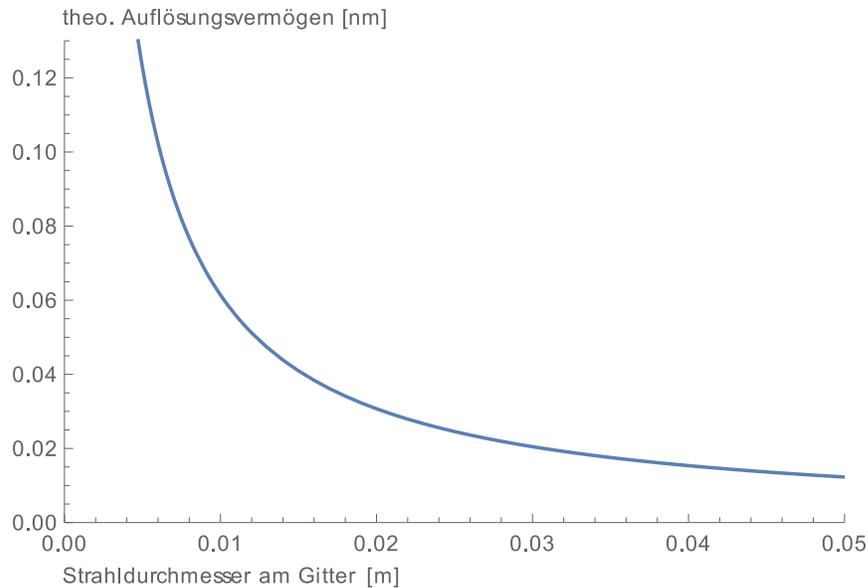


Abbildung B.2: Plot der Abhängigkeit des Auflösungsvermögens gegen den Durchmesser des Strahls, der die Gitterfläche beleuchtet

Experimentell wurde auch das Auflösungsvermögen bestimmt. Hierzu wurde anstatt des aufgesammelten Fluoreszenzlichts Laserlicht des durchstimmbaren Diodenlasers durch den Aufbau geführt. Die Transmission wurde mittels einer Photodiode gemessen und com-

putergestützt zusammen mit der Schrittmotorposition verarbeitet. Die gemessenen Werte wurden dann mit einer Gaußfunktion

$$y = y_0 + \frac{A}{w\sqrt{\pi/2}} \cdot \exp\left(-2\frac{(x - x_c)^2}{w^2}\right) \quad (\text{B.16})$$

angepasst. Dabei wurde Laser in 10 pm Schritten durchgestimmt und für jeden Schritt der Monochromator gescant. Eine experimentelle Unterscheidbarkeit der gemessenen und angepassten Werte ergab sich ab etwa 20 pm, wobei der Unterschied aber noch weniger als  $0,5\sigma$  war. Abbildung B.3 zeigt zwei gemessene Kurven für 20 pm Wellenlängendifferenz. Eine eindeutige Unterscheidbarkeit von zwei Wellenlängen ist erst bei circa 40 bis 50 pm gegeben. Durch Anpassen der Öffnung des im Fokuspunkt stehenden Schlitzes kann das Auflösungsvermögen variiert werden, ein vollkommenes Öffnen des Schlitzes verringert das Auflösungsvermögen auf ca. 0,1 nm.

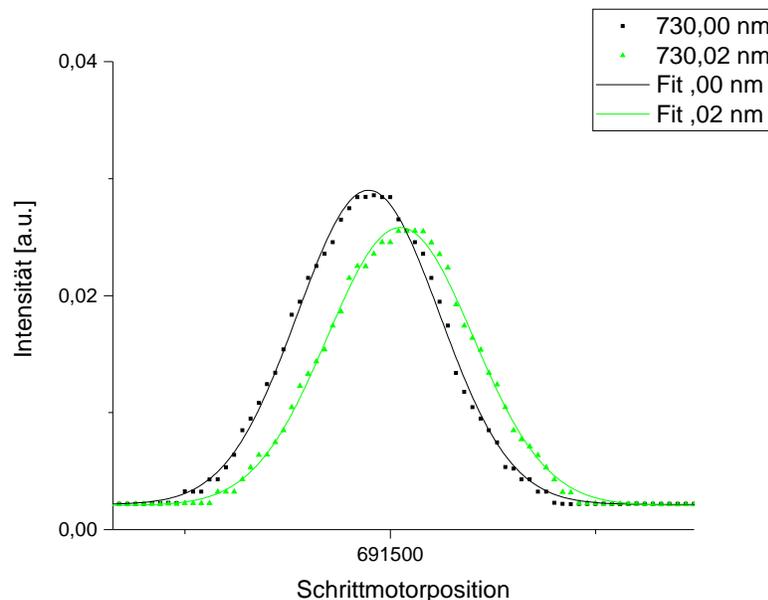


Abbildung B.3: Plot der gemessenen Transmission durch den Monochromator gegen die Schrittmotorposition und der dazugehörigen Fits für zwei verschiedene Wellenlängen.

Die angepassten Werte wurden dann wiederum gegen die Wellenlänge des Lasers aufgetragen und mit einer linearen Funktion  $y = a \cdot x + b$  angepasst. Damit wurde der Monochromator kalibriert und im Rahmen des Experiments verwendet.

---

Wellenlänge Laser [nm]	$x_c$ angepasst
727,5	694446,44864
730	697345,16835
732,5	700173,06974
735	703033,25708
738	706567,72405
739	707675,50309

Tabelle B.1: Auflistung der ermittelten Position des Gitterschrittmotors für definierte Wellenlängen



# Literaturverzeichnis

- [1] Mark Fox. *Quantum Optics: An Introduction*. 2010.
- [2] T D Ladd, F Jelezko, R Laflamme, Y Nakamura, C Monroe, and J L O'Brien. Quantum computers. *Nature*, 464(7285):45–53, 2010.
- [3] Thomas Beth and Gerd Leuchs. *Quantum information processing*. John Wiley & Sons, 2006.
- [4] Nicolas Gisin, Grégoire Ribordy, Wolfgang Tittel, and Hugo Zbinden. Quantum cryptography. *Reviews of Modern Physics*, 74(1):145–195, March 2002.
- [5] Brahim Lounis and Michel Orrit. Single-photon sources. *Reports on Progress in Physics*, 68(5):1129–1179, 2005.
- [6] Peter Lodahl, Sahand Mahmoodian, and Søren Stobbe. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures. *Rev. Mod. Phys.*, 87:347–400, May 2015.
- [7] H J Kimble, M Dagenais, and L Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters*, 39(11):691–695, September 1977.
- [8] Frank Diedrich and Herbert Walther. Nonclassical radiation of a single stored ion. *Physical Review Letters*, 58(3):203–206, January 1987.
- [9] Christian Brunel, Brahim Lounis, Philippe Tamarat, and Michel Orrit. Triggered Source of Single Photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence. *Physical Review Letters*, 83(14):2722–2725, October 1999.
- [10] Mathias Steiner, Achim Hartschuh, Rafa?? Korlacki, and Alfred J Meixner. Highly efficient, tunable single photon source based on single molecules. *Applied physics letters*, 90(18):183122, 2007.
- [11] P Michler, A Kiraz, C Becher, W V Schoenfeld, P M Petroff, Lidong Zhang, E Hu, and A Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, 290(5500):2282–2285, 2000.

- [12] A J Shields, R M Stevenson, R M Thompson, M B Ward, Z Yuan, B E Kardynal, P See, I Farrer, C Lobo, K Cooper, and D A Ritchie. Self-assembled quantum dots as a source of single photons and photon pairs. *Physica Status Solidi (B) Basic Research*, 238(2):353–359, July 2003.
- [13] A. M. Zaitsev. Vibronic spectra of impurity-related optical centers in diamond. *Phys. Rev. B*, 61:12909–12922, May 2000.
- [14] Christian Kurtsiefer, Sonja Mayer, Patrick Zarda, and Harald Weinfurter. Stable solid-state source of single photons. *Physical Review Letters*, 85(2):290–293, 2000.
- [15] F. Jelezko and J. Wrachtrup. Single defect centres in diamond: A review. *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science*, 203(13):3207–3225, 2006.
- [16] E Togan, Y Chu, A S Trifonov, L Jiang, J Maze, L Childress, M V G Dutt, A S Sorensen, P R Hemmer, A S Zibrov, and M D Lukin. Quantum entanglement between an optical photon and a solid-state spin qubit. *Nature*, 466(7307):730–734, August 2010.
- [17] Elke Neu, David Steinmetz, Janine Riedrich-Möller, Stefan Gsell, Martin Fischer, Matthias Schreck, and Christoph Becher. Single photon emission from silicon-vacancy colour centres in chemical vapour deposition nano-diamonds on iridium. *New Journal of Physics*, 13(2):025012, 2011.
- [18] A. Sipahigil, K. D. Jahnke, L. J. Rogers, T. Teraji, J. Isoya, A. S. Zibrov, F. Jelezko, and M. D. Lukin. Indistinguishable photons from separated silicon-vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 113:113602, Sep 2014.
- [19] Alexios Beveratos, Rosa Brouri, Thierry Gacoin, Jean-Philippe Poizat, and Philippe Grangier. Nonclassical radiation from diamond nanocrystals. *Physical Review A*, 64(6):61802, November 2001.
- [20] Lars Liebermeister, Fabian Petersen, Asmus V. Münchow, Daniel Burchardt, Juliane Hermelbracht, Toshiyuki Tashima, Andreas W. Schell, Oliver Benson, Thomas Meinhardt, Anke Krueger, Ariane Stiebeiner, Arno Rauschenbeutel, Harald Weinfurter, and Markus Weber. Tapered fiber coupling of single photons emitted by a deterministically positioned single nitrogen vacancy center. *Applied Physics Letters*, 104(3):–, 2014.
- [21] J.E. Field. *The Properties of Natural and Synthetic Diamond*. Academic Press, 1992.
- [22] Charles Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag, 2013.
- [23] Paul K Chu and Liuhe Li. Characterization of amorphous and nanocrystalline carbon films. *Materials Chemistry and Physics*, 96(2):253–277, 2006.

- [24] Alexander M Zaitsev. *Optical properties of diamond: a data handbook*. Springer Science & Business Media, 2013.
- [25] DT Morelli, CP Beetz, and TA Perry. Thermal conductivity of synthetic diamond films. *Journal of applied physics*, 64(6):3063–3066, 1988.
- [26] Vadym N Mochalin, Olga Shenderova, Dean Ho, and Yury Gogotsi. The properties and applications of nanodiamonds. *Nature nanotechnology*, 7(1):11–23, 2012.
- [27] M Werner and R Locher. Growth and application of undoped and doped diamond films. *Reports on Progress in Physics*, 61(12):1665, 1998.
- [28] Anke Krüger. *Neue Kohlenstoffmaterialien: Eine Einführung*. Springer-Verlag, 2007.
- [29] Satoshi Koizumi, Christoph Nebel, and Milos Nesladek. *Physics and applications of CVD diamond*. John Wiley & Sons, 2008.
- [30] CD Clark and CB Dickerson. The 1.681 eV centre in polycrystalline diamond. *Surface and Coatings Technology*, 47(1):336–343, 1991.
- [31] J Ruan, WJ Choyke, and WD Partlow. Si impurity in chemical vapor deposited diamond films. *Applied physics letters*, 58(3):295–297, 1991.
- [32] M Stammer, H Eisenbeiß, J Ristein, J Neubauer, M Göbbels, and L Ley. Growth of high-quality homoepitaxial diamond films by hf-cvd. *Diamond and related materials*, 11(3):504–508, 2002.
- [33] Chunlang Wang, Christian Kurtsiefer, Harald Weinfurter, and Bernd Burchard. Single photon emission from SiV centres in diamond produced by ion implantation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 39(1):37, 2006.
- [34] Chunlang Wang. *A Solid-State Single Photon Source Based on Color Centers in Diamond*. PhD thesis, Department of Physics at the Ludwig-Maximilians-University Munich, 2007.
- [35] C. D. Clark, H. Kanda, I. Kiflawi, and G. Sittas. Silicon defects in diamond. *Phys. Rev. B*, 51:16681–16688, Jun 1995.
- [36] VS Vavilov and A Gippius. Investigation of the cathodoluminescence of epitaxial diamond films. *Sov. Phys. Semicond.*, 14(9):1078–1079, 1980.
- [37] AM Zaitsev, VS Vavilov, and AA Gippius. Cathodoluminescence of diamond associated with silicon impurity. *Sov. Phys. Lebedev Inst. Rep.*, 10:15–17, 1981.
- [38] AM Edmonds, UFS D Haenens-Johansson, RJ Cruddace, ME Newton, K-MC Fu, C Santori, RG Beausoleil, DJ Twitchen, and ML Markham. Production of oriented nitrogen-vacancy color centers in synthetic diamond. *Physical Review B*, 86(3):035201, 2012.

- [39] JP Goss, R Jones, SJ Breuer, PR Briddon, and Sven Öberg. The twelve-line 1.682 eV luminescence center in diamond and the vacancy-silicon complex. *Physical review letters*, 77(14):3041, 1996.
- [40] JP Goss, PR Briddon, and MJ Shaw. Density functional simulations of silicon-containing point defects in diamond. *Physical Review B*, 76(7):075204, 2007.
- [41] Adam Gali and Jeronimo R Maze. Ab initio study of the split silicon-vacancy defect in diamond: Electronic structure and related properties. *Physical Review B*, 88(23):235205, 2013.
- [42] Lachlan J Rogers, Kay D Jahnke, T Teraji, Luca Marseglia, Christoph Müller, Boris Naydenov, Hardy Schauffert, C Kranz, Junichi Isoya, Liam P McGuinness, et al. Multiple intrinsically identical single-photon emitters in the solid state. *Nature communications*, 5, 2014.
- [43] K. Beha, a. Batalov, N. B. Manson, R. Bratschitsch, and a. Leitenstorfer. Optimum Photoluminescence Excitation and Recharging Cycle of Single Nitrogen-Vacancy Centers in Ultrapure Diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 109(9):97404, August 2012.
- [44] U. F. S. D’Haenens-Johansson, A. M. Edmonds, B. L. Green, M. E. Newton, G. Davies, P. M. Martineau, R. U. A. Khan, and D. J. Twitchen. Optical properties of the neutral silicon split-vacancy center in diamond. *Phys. Rev. B*, 84:245208, Dec 2011.
- [45] Christian Hepp, Tina Müller, Victor Waselowski, Jonas N. Becker, Benjamin Pingault, Hadwig Sternschulte, Doris Steinmüller-Nethl, Adam Gali, Jeronimo R. Maze, Mete Atatüre, and Christoph Becher. Electronic structure of the silicon vacancy color center in diamond. *Physical Review Letters*, 112(3), 2014.
- [46] Christian Hepp. *Electronic structure of the silicon vacancy color center in diamond*. PhD thesis, Universitaet des Saarlandes, 2014.
- [47] K Iakoubovskii and G J Adriaenssens. Optical detection of defect centers in CVD diamond. *Diamond and Related Materials*, 9(7):1349–1356, July 2000.
- [48] Tina Müller, Christian Hepp, Benjamin Pingault, Elke Neu, Stefan Gsell, Matthias Schreck, Hadwig Sternschulte, Doris Steinmüller-Nethl, Christoph Becher, and Mete Atatüre. Optical signatures of silicon-vacancy spins in diamond. *Nature communications*, 5:3328, 2014.
- [49] John Walker. Optical absorption and luminescence in diamond. *Reports on Progress in Physics*, 42(10):1605, 1979.
- [50] G Davies. The Jahn-Teller effect and vibronic coupling at deep levels in diamond. *Reports on Progress in Physics*, 44(7):787–830, 2000.

- [51] A. Gorokhovskiy, A. Turukhin, R. Alfano, and W. Phillips. Photoluminescence vibrational structure of Si center in chemical-vapor deposited diamond. *Applied Physics Letters*, 43(1995):43, 1995.
- [52] Alan T Collins, Lars Allers, Christopher J H Wort, and Geoffrey A Scarsbrook. The annealing of radiation damage in De Beers colourless CVD diamond. *Diamond and Related Materials*, 3(4-6):932–935, April 1994.
- [53] Tom Feng and Bradley D. Schwartz. Characteristics and origin of the 1.681 eV luminescence center in chemical-vapor-deposited diamond films. *Journal of Applied Physics*, 73(3):1415–1425, 1993.
- [54] Igor I Vlasov, Andrey A Shiryaev, Torsten Rendler, Steffen Steinert, Sang-Yun Lee, Denis Antonov, Márton Vörös, Fedor Jelezko, Anatolii V Fisenko, Lubov F Semjonova, et al. Molecular-sized fluorescent nanodiamonds. *Nature nanotechnology*, 9(1):54–58, 2014.
- [55] Andreas Albrecht, Alex Retzker, Fedor Jelezko, and Martin B Plenio. Coupling of nitrogen vacancy centres in nanodiamonds by means of phonons. *New Journal of Physics*, 15(8):083014, 2013.
- [56] Thomas M Babinec, Birgit J M Hausmann, Mughees Khan, Yinan Zhang, Jeronimo R Maze, Philip R Hemmer, and Marko Loncar. A diamond nanowire single-photon source. *Nature nanotechnology*, 5(3):195–199, 2010.
- [57] J. P. Hadden, J. P. Harrison, a. C. Stanley-Clarke, L. Marseglia, Y. L D Ho, B. R. Patton, J. L. O’Brien, and J. G. Rarity. Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses. *Applied Physics Letters*, 97(24), 2010.
- [58] Tim Schröder, Masazumi Fujiwara, Tetsuya Noda, Hong-Quan Zhao, Oliver Benson, and Shigeaki Takeuchi. A nanodiamond-tapered fiber system with high single-mode coupling efficiency. *Optics Express*, 20(10):10490, 2012.
- [59] Robert Hanbury Brown and Richard Q. Twiss. A new type of interferometer for use in radio astronomy. *Philosophical Magazine*, 45:663–682, 1954.
- [60] Robert Hanbury Brown and Richard Q. Twiss. Correlations between photons in two coherent beams of light. *Nature*, 177:27–32, 1956.
- [61] F. Böhm. Tieftemperaturuntersuchungen von silizium-fehlstellen-farbzentren in diamant-nanokristallen. Master’s thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2015.
- [62] attocube systems AG. attocube systems pulse tube cooling system. Technical report, 2009.

- [63] Michael G Littman and Harold J Metcalf. Spectrally narrow pulsed dye laser without beam expander. *Applied optics*, 17(14):2224–2227, 1978.
- [64] Elizabeth Bruce. Tunable lasers. *IEEE Spectrum*, 39(2):35–39, 2002.
- [65] Christian Kurtsiefer, Patrick Zarda, Sonja Mayer, and Harald Weinfurter. The breakdown flash of Silicon Avalanche Photodiodes - backdoor for eavesdropper attacks? page 9, 2001.
- [66] Philip R Dolan, Xiangping Li, Jelle Storteboom, and Min Gu. Complete determination of the orientation of nv centers with radially polarized beams. *Optics express*, 22(4):4379–4387, 2014.
- [67] C. H. Bennett and G. Brassard. Quantum cryptography: Public-key distribution and coin tossing. In *Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing*, pages 175–179, Bangalore, Indien, 1984. IEEE Press.
- [68] Alexander Huck, Shailesh Kumar, Abdul Shakoor, and Ulrik L. Andersen. Controlled coupling of a single nitrogen-vacancy center to a silver nanowire. *Physical Review Letters*, 106(9):2–5, 2011.
- [69] Michel Gross and Serge Haroche. Superradiance: An essay on the theory of collective spontaneous emission. *Physics Reports*, 93(5):301–396, 1982.
- [70] Vasily V. Temnov and Ulrike Woggon. Photon statistics in the cooperative spontaneous emission. *Opt. Express*, 17(7):5774–5782, Mar 2009.
- [71] Vasily V Temnov and Ulrike Woggon. Photon statistics in the cooperative spontaneous emission. *Optics express*, 17(7):5774–5782, 2009.
- [72] Clemens Matthiesen, Martin Geller, Carsten H H Schulte, Claire Le Gall, Jack Hansom, Zhengyong Li, Maxime Hugues, Edmund Clarke, and Mete Atatüre. Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source. *Nature communications*, 4:1600, 2013.
- [73] Niko Heinrichs. *Design, Fabrikation und Charakterisierung von dielektrischen Wellenleitern aus Ta2O5*. Masterarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2015.
- [74] Peter Fischer. Dielektrische slot-wellenleiter zur effizienten kopplung von diamantfarbzentren. Master’s thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2015.
- [75] Qimin Quan, Irfan Bulu, and Marko Lončar. Broadband waveguide QED system on a chip. *Physical Review A*, 80(1):1–4, 2009.
- [76] Francesco Dell’Olio and Vittorio M Passaro. Optical sensing by optimized silicon slot waveguides. *Optics express*, 15(8):4977–4993, 2007.

- 
- [77] Pao Tai Lin, Sen Wai Kwok, Hao-Yu Greg Lin, Vivek Singh, Lionel C Kimerling, George M Whitesides, and Anu Agarwal. Mid-Infrared Spectrometer Using Opto-Nanofluidic Slot-Waveguide for Label-Free On-Chip Chemical Sensing. *Nano Letters*, 14(1):231–238, January 2014.
- [78] Jaesuk Hwang and E. a. Hinds. Prospects for giant optical nonlinearity on a chip. pages 1–8, 2011.
- [79] Darrick E. Chang, Anders S. Sørensen, Eugene a. Demler, and Mikhail D. Lukin. A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons. *Nature Physics*, 3(11):807–812, 2007.



# Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Diplomarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

München, den 1.12.2015

Lukas Worthmann