

N/V-Zentren als Einzel-Photonen-Quelle

Schriftliche Hausarbeit für die erste Staatsprüfung für das
Lehramt an Gymnasien



vorgelegt von Sonja Mayer

Arbeitsgruppe Prof. Dr. H. Weinfurter
Sektion Physik
Ludwig-Maximilians-Universität München

München, Mai 2000

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Theoretische Grundlagen	6
2.1	Das N/V-Zentrum im Diamant	6
2.1.1	Aufklärung der Struktur des 637-nm-Defekts	6
2.1.2	Erklärung des Spektrums	9
2.2	Gaußsche Optik	11
2.2.1	Die TEM ₀₀ -Mode als Lösung der Wellengleichung	11
2.2.2	Das Verhalten Gaußscher Strahlen an optischen Systemen	14
3	Experimentelle Durchführung	16
3.1	Das konfokale Mikroskop	16
3.1.1	Auflösung des konfokalen im Vergleich zum konventionellen Mikroskop	17
3.1.2	Begründung des verwendeten Mikroskopaufbaus	18
3.1.3	Eigenschaften der verwendeten Komponenten	19
3.1.4	Berechnung der Abmessungen des Mikroskops	23
3.1.5	Justage des Mikroskops	30
3.2	Aufnahmen mit dem konfokalen Mikroskop	34
3.2.1	Auffinden einzelner Fehlstellen	34
3.2.2	„Größe“ und Dichte der Fehlstellen	36
3.2.3	Leistungsabhängige Sättigung der Fluoreszenz	38
3.3	Spektrum des N/V-Zentrums	41
3.3.1	Aufbau des Spektrometers	41
3.3.2	Justage des Spektrometers	43
3.3.3	Gemessene Spektren der N/V-Zentren	45
3.4	Einzel-Photonen-Nachweis	48
3.4.1	Aufbau des Hanbury-Brown-Twiss-Experiments (HBT)	48
3.4.2	Auftretende Probleme bei den HBT-Aufnahmen	51
3.4.3	Verhalten der Detektoren	53

<i>INHALTSVERZEICHNIS</i>	3
3.4.4 Erneute HBT-Aufnahmen unter Berücksichtigung des Detektorenverhaltens	58
4 Vergleich mit anderen Experimenten	61
5 Zusammenfassung und Ausblick	63
Literaturverzeichnis	68

Kapitel 1

Einleitung

Für ein grundlegendes Verständnis der Quantenmechanik sind Experimente an einzelnen Quantensystemen, z.B. an einzelnen Photonen, von entscheidender Bedeutung. Außerdem erhält eine potenzielle Anwendung einzelner Photonen immer mehr Beachtung: die sogenannte Quantenkryptographie.

Das Prinzip der Quantenkryptographie besteht darin, dass Photonen mit einem definierten Quantenzustand als Träger eines Verschlüsselungscodes fungieren. Ein zwischen Sender und Empfänger befindlicher Abhörer verändert durch seine Messung den Zustand des Photons und damit den Code. Dadurch erkennen die beiden Kommunikationspartner, dass sie abgehört werden und verwenden demzufolge den Code nicht mehr.

Im Prinzip ist so eine Übermittlung vollkommen sicher. Dabei ist es jedoch von essenzieller Bedeutung, dass jeweils nur ein Photon in einem bestimmten Quantenzustand verschickt wird. Ansonsten könnte der Abhörer an einem Photon messen und das andere unverändert passieren lassen; der Code würde also erhalten bleiben.

Der Forderung nach einzelnen Photonen wird dabei durch extrem abgeschwächte Laserpulse genüge getan, die im Mittel nur ca. 0,1 Photonen enthalten (z.B. [1], [2], [3]). Dadurch sinkt natürlich die Wahrscheinlichkeit, zwei Photonen in einem Puls zu haben. Abgesehen von dem immer noch vorhandenen, nicht unerheblichen Restrisiko mehrerer Photonen [4] existiert aber noch ein weiterer Nachteil dieser Vorgehensweise, und zwar die geringe Übertragungsrate.

Neue Ansätze für eine „tatsächliche“ Einzel-Photonen-Quelle, die zu einem definierten Zeitpunkt immer nur genau ein Photon aussendet, sind also gefragt.

In dieser Arbeit wird dafür als mögliche Quelle eine charakteristische Verunreinigung von Diamant benutzt, das sog. N/V-Zentrum. Dabei handelt es

sich um ein substituiertes Stickstoffatom (N) und eine Kohlenstoff-Fehlstelle im Diamantgitter (V) in unmittelbarer Nachbarschaft. Zur Erzeugung einzelner Photonen regt ein Laser über ein konfokales Mikroskop, das im Rahmen dieser Arbeit entworfen wurde, gezielt eine einzige Verunreinigung an. Bei dem anschließenden elektronischen Übergang in den Grundzustand sendet das System ein einzelnes Photon aus.

Zuallererst werden in der vorliegenden Arbeit einige theoretische Grundlagen des N/V-Zentrums und der geometrischen Optik behandelt. Im anschließenden Kapitel werden zunächst der Aufbau des konfokalen Mikroskops und die damit gewonnenen Aufnahmen beschrieben. Danach wird mit Hilfe eines Spektrums nachgewiesen, dass es sich bei den beobachteten „Leuchtpunkten“ tatsächlich um N/V-Zentren handelt. Der für dieses Experiment so bedeutsame Einzel-Photonen-Charakter wird dann durch ein sogenanntes Hanbury-Brown-Twiss-Experiment nachgewiesen (s. Kapitel 3.4).

Auf Ansätze anderer Forschungsgruppen, eine Einzel-Photonen-Quelle zu verwirklichen, wie parametrische Fluoreszenz, Resonanzfluoreszenz von einzelnen Ionen in Fallen oder von einzelnen Molekülen in bestimmten Trägermaterialien, wird in Kapitel 4 teilweise noch genauer eingegangen.

Abschließend folgt eine Zusammenfassung der bisherigen Ergebnisse und ein Ausblick auf mögliche Verbesserungs- und Erweiterungsansätze des Experiments.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen des Experiments

2.1 Das N/V-Zentrum im Diamant

Mit Hilfe des im Rahmen dieser Arbeit gebauten konfokalen Mikroskops sollen gewisse Defekte im Diamant gezielt optisch angeregt und deren Fluoreszenzlicht untersucht werden. Bei diesen Defekten handelt es sich um Stickstoff-Fehlstellen-Kombinationen, sogenannten N/V-Zentren, deren historische Strukturaufklärung und deren Spektrum im Folgenden etwas genauer beschrieben werden.

Der hier verwendete, künstlich hergestellte Diamant, wird als Typ Ib bezeichnet und enthält als überwiegende Verunreinigung Stickstoff in Form einzeln substituierter Atome. Eines der in Diamanten dieses Typs vorkommenden Fluoreszenzzentren stellt das sog. N/V-Zentrum mit einer Zero-Phonon-Line (ZPL)¹ bei 637 nm dar.

2.1.1 Aufklärung der Struktur des 637-nm-Defekts

Da Diamant sich durch viele besondere Eigenschaften auszeichnet, wie außergewöhnliche Härte, gute Wärmeleitfähigkeit und geringe Austrittsarbeit für Elektronen, ist er für eine Fülle von technischen Anwendungen von Bedeutung. Daher fehlt es auch nicht an wissenschaftlichen Arbeiten über dieses Material, von denen sich viele mit dessen Verunreinigungen bzw. Defekten auseinandersetzen [5],[6]. Um den Rahmen dieser Arbeit nicht zu sprengen, soll im Folgenden jedoch nur auf die über das in diesem Versuch verwendete

¹Dies bezeichnet einen Übergang, bei dem keinerlei Phononen beteiligt sind; s. auch S. 10.

N/V-Zentrum gewonnenen Erkenntnisse eingegangen werden.

Bereits 1965, als noch sehr wenig über die verschiedenen Verunreinigungen des Diamants und deren charakteristische Fluoreszenz bekannt war, beschrieb du Preez die Präparationsbedingungen, um die erwähnte Fluoreszenz bei 637 nm zu beobachten [7]. Nach seinen Erkenntnissen ist es nötig, einen stickstoffhaltigen Diamant zunächst mit energiereichen Elektronen zu bestrahlen und anschließend über 900 K zu erhitzen.

Zehn Jahre später schloss Davies auf Grund von kleinen Unterschieden zwischen Fluoreszenz- und Absorptionsspektrum des besagten Zentrums auf ein angeregtes Potential mit doppeltem Minimum (s. Abb. 2.2). Dies weist zusammen mit Ergebnissen aus Heizexperimenten darauf hin, dass der 637-nm-Defekt aus einer Kombination eines substituierten Stickstoff-Atoms (N) und einer Kohlenstoff-Fehlstelle (V für Vacancy) in unmittelbarer Nachbarschaft besteht, wobei die beiden Minima durch „Tunneln“ des Stickstoffs an die Position der Fehlstelle entstehen [8] (s. Abb. 2.1).

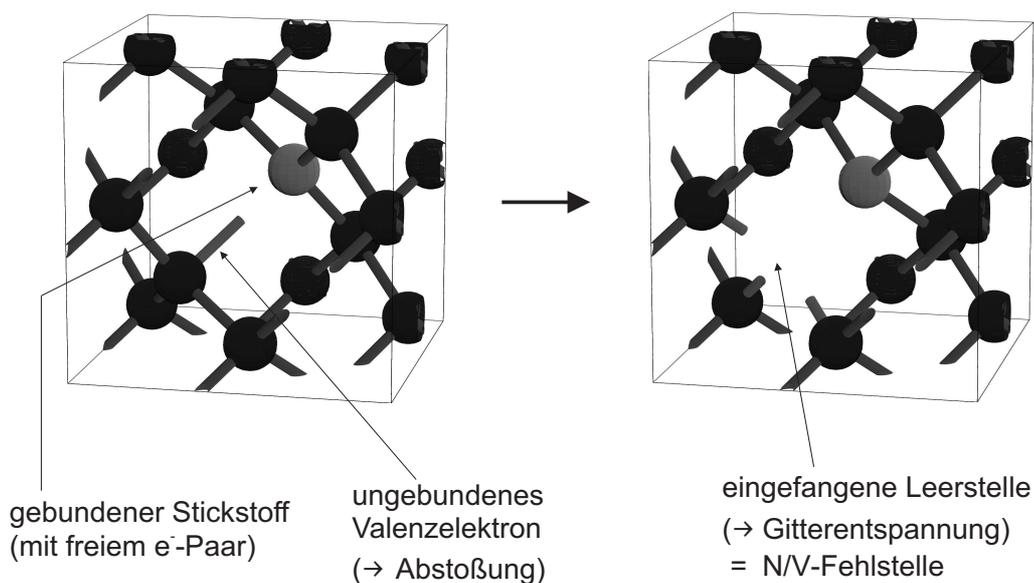


Abbildung 2.1: Struktur des N/V-Zentrums im Diamantgitter

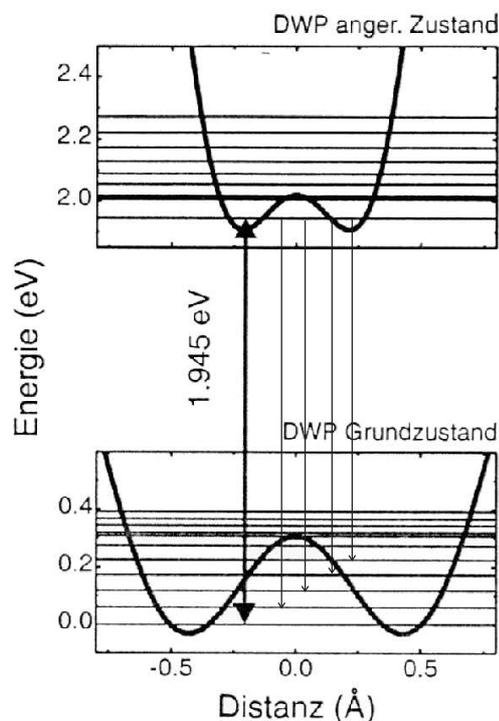


Abbildung 2.2: Doppelmulden-Potential (DWP - double well potential) des N/V-Zentrums, bedingt durch die beiden möglichen Stickstoff-Positionen; die möglichen Schwingungsniveaus sind als Linien dargestellt; mögliche Übergänge vom untersten Schwingungsniveau des angeregten Zustands in den Grundzustand sind durch Pfeile verdeutlicht (siehe S. 9); aus [13]

1982 maß Collins die Zerfallszeit des angeregten Zustands des N/V-Zentrums. Dabei erhielt er leicht unterschiedliche Werte für natürlichen bzw. synthetisch hergestellten Ib-Diamant ($13 \pm 0,5$ ns bzw. $11,5 \pm 0,5$ ns), was er auf zusätzliche Verunreinigungen des letzteren zurückführte [9]. Da der Zerfall in den Grundzustand also eine endliche Zeit benötigt, kann immer nur ein Photon gleichzeitig ausgesandt werden. Dies macht das N/V-Zentrum als Einzel-Photonen-Quelle interessant.

Schließlich gelang es Mainwood 1993, also fast dreißig Jahre nach den Beobachtungen von Preez, die von diesem festgestellten Präparationsbedingungen durch ein theoretisches Modell zu erklären [10].

Damit kann die Identifikation der 637-nm-Stelle als N/V-Zentrum als relativ gesichert betrachtet werden. Genauere Untersuchungen, vor allem am Spektrum dieses Defekts, bilden nun das Thema des nächsten Abschnitts.

2.1.2 Erklärung des Spektrums

Als elektronisches Modell für das N/V-Zentrum schlagen Harley und Reddy auf Grund ihrer Tief-Temperatur-Experimente ein Drei-Niveau-System mit einem metastabilen Seitenzustand vor [11], [12]. Dieses System ist schematisch in Abb. 2.3 dargestellt.

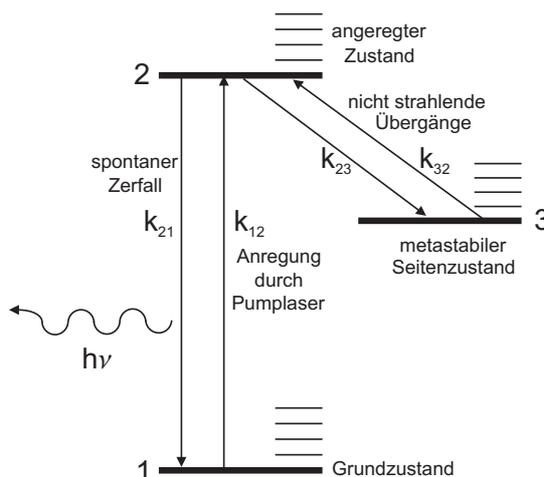


Abbildung 2.3: Drei-Niveau-System der Fluoreszenz des N/V-Zentrums mit Übergangsraten; die dünnen waagrechten Linien deuten verschiedene Schwingungszustände an

Das Spektrum dieser Fehlstelle ist in Abb. 2.4 dargestellt. Es beinhaltet eine deutlich ausgeprägte ZPL bei 1,943 eV (637 nm), und eine Phononen-Verbreiterung im Bereich von 1,6 bis 2,0 eV (630 bis 750 nm). Ein derartiges Spektrum mit Zero-Phonon-Line und anschließenden Phononen-Seitenbanden wird Mössbauer-Typ genannt [13] und lässt sich folgendermaßen erklären:

Da in einem Festkörper immer energetisch verschiedene Schwingungszustände des Kristallgitters herrschen können, ist hier ein Übergang vom Grundzustand in einen angeregten Zustand und umgekehrt nicht scharf definiert. Durch die Laseranregung wird ein Elektron vom Grundzustand in einen beliebigen Schwingungszustand des angeregten Zustands gehoben. Beim anschließenden „Rückfall“ in den Grundzustand ist jedoch als Ausgangs-Schwingungszustand nur der energetisch niedrigste von Bedeutung, da die zeitliche Dauer des Übergangs von höheren Schwingungszuständen in den energetisch niedrigsten um mehrere Größenordnungen kleiner ist als die Zerfallszeit des angeregten Zustands in den Grundzustand. Die sich so ergebenden Übergänge vom angeregten Zustand in die verschiedenen Schwingungs-

zustände des Grundzustands sind in Abb. 2.2 für das N/V-Zentrum angedeutet.

Die dabei auftretenden Energiedifferenzen werden durch die Einführung von „Schwingungsteilchen“, sog. Phononen, kompensiert. Dabei bedeutet die Anregung oder der Zerfall in einen höheren Schwingungszustand die Vernichtung, in einen tieferen die Erzeugung eines Phonons. Der Übergang vom niedrigsten Schwingungszustand des angeregten Zustands in den niedrigsten Schwingungszustand des Grundzustands erfolgt also ohne Phononenerzeugung bzw. -vernichtung und heisst deshalb auch Zero-Phonon-Übergang.

Man kann die Wahrscheinlichkeit berechnen, mit der ein Übergang in einen bestimmten Schwingungszustand stattfindet [13]. Diese errechnete Wahrscheinlichkeit bestimmt den prozentualen Anteil von Licht des entsprechenden Übergangs im Spektrum. Da die energetische Position des Maximums dieses Übergangs ebenfalls festgelegt ist, kann nur noch die Breite des jeweiligen lorentzförmigen Beitrags numerisch variiert werden, bis die Summe all dieser Beiträge das gemessene Spektrum möglichst gut darstellt. In Abb. 2.4 wird dieses Verfahren für die ersten fünf Übergänge dargestellt und dabei eine weitgehende Übereinstimmung mit der gemessenen Kurve erzielt.

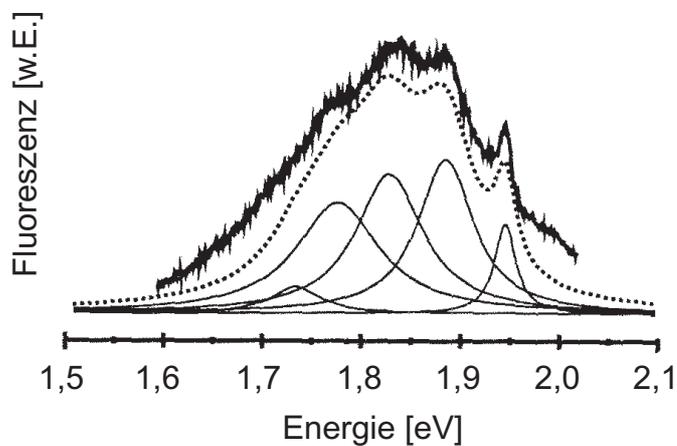


Abbildung 2.4: Gemessenes und simuliertes Spektrum eines N/V-Zentrums; die Summe der einzelnen lorentzförmigen elektronischen Übergänge (durchgezogene Linien) ergibt das komplette Spektrum (gepunktete Linie); aus [13]

2.2 Gaußsche Optik

Um die Geometrie des verwendeten konfokalen Mikroskops genau berechnen zu können, ist es zunächst nötig, sich einen Überblick über die Gaußsche Optik zu verschaffen. Anschließend wird noch ein Verfahren der geometrischen Optik erläutert, das auch auf die beugungsbegrenzte Gaußsche Optik anwendbar ist, die sog. ABCD-Matrix. Diese beschreibt auf einfache Weise den Durchgang von Lichtstrahlen durch optische Komponenten.

2.2.1 Die TEM₀₀-Mode als Lösung der Wellengleichung

Für die anschließende Rechnung kann das Lichtfeld des Anregungslasers als elektromagnetisches Feld mit separierter zeitlicher Entwicklung betrachtet werden. Außerdem breitet sich das Laserlicht entlang der z-Achse aus und ist in der (x,y)-Ebene rotationssymmetrisch. All diese Eigenschaften werden verwendet, um eine adäquate Lösung der Wellengleichung zu finden. Diese aus den Maxwell-Gleichungen abgeleitete Wellengleichung lautet:

$$\Delta \mathbf{E} - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.1)$$

Aufgrund der zeitlichen Separierbarkeit wird folgender Ansatz gewählt:

$$\mathbf{E} = E(x, y, z) e^{i(\omega t - \mathbf{k}(\mathbf{r})\mathbf{r})} \quad (2.2)$$

Damit gelangt man zu einer vereinfachten Form der Wellengleichung:

$$\Delta \mathbf{E} + \mu_0 \varepsilon_0 \omega^2 \mathbf{E} = 0 \quad (2.3)$$

bzw. mit $k = \omega \sqrt{\mu_0 \varepsilon_0}$ zu:

$$\Delta \mathbf{E} + k(\mathbf{r})^2 \mathbf{E} = 0 \quad (2.4)$$

Unter den oben genannten Bedingungen erhält man die sogenannte Modenzersetzung des elektrischen Feldes mit charakteristischen Eigenfunktionen [17].

Der im weiteren bedeutsame Lösungstyp, die sog. TEM₀₀-Mode, lautet:

$$\Psi(r, z) = \exp \left\{ -i \left(-i \ln \left(1 + \frac{z}{q_0} \right) + \frac{kr^2}{2(q_0 + z)} \right) \right\}, \quad (2.5)$$

wobei $\mathbf{E} = \Psi(r, z)e^{-ikz}$, $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ und q_0 eine Integrationskonstante ist. Diese Konstante q_0 wird nun im Folgenden durch eine andere Konstante w_0 ersetzt, wobei gilt:

$$q_0 = i \frac{w_0^2 n \pi}{\lambda} \quad \text{mit} \quad \lambda = \frac{2\pi n}{k} \quad (2.6)$$

Dabei bezeichnet n den Brechungsindex des Mediums, in dem sich das Licht ausbreitet und λ die Vakuumwellenlänge. Bei festem λ ist also w_0 der einzige freie Parameter dieser Lösung der Wellengleichung. Dabei handelt es sich um die sog. „Strahltaille“, den kleinstmöglichen Radius dieses sogenannten Gaußschen Strahls [17], innerhalb dessen 63% der Intensität des Strahls liegen (s. Abb. 2.5).

Es gibt nun eine Reihe weiterer physikalisch bedeutsamer Größen einer TEM₀₀-Mode, die sich mit Hilfe von w_0 ausdrücken lassen [17]. „Waist“ (Strahlradius an einer bestimmten z -Position):

$$w(z) := w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_r^2}} \quad (2.7)$$

mit Rayleigh-Länge (bestimmt die Strahlaufweitung):

$$z_r := \frac{q_0}{i} = \frac{w_0^2 n \pi}{\lambda} \quad (2.8)$$

Krümmungsradius des Strahls:

$$R(z) := z \left(1 + \frac{z_r^2}{z^2} \right) \quad (2.9)$$

Winkel, an den sich die Strahlaufweitung asymptotisch annähert, der sog. Divergenzwinkel:

$$\Theta := \tan^{-1} \left(\frac{\lambda}{\pi w_0} \right) \quad (2.10)$$

Da die Intensität I des Strahls eine experimentell bestimmbare Größe ist, ist auch sie von entscheidender Bedeutung. Dabei gilt für eine (wie hier) komplexe Feldstärke \mathbf{E} :

$$I = \varepsilon_0 |\mathbf{E}|^2 \quad (2.11)$$

Damit ergibt sich für die Ortsabhängigkeit der Intensität einer TEM₀₀-Mode:

$$I(r, z) = I_0(z) e^{-\frac{2r^2}{w^2(z)}} \quad (2.12)$$

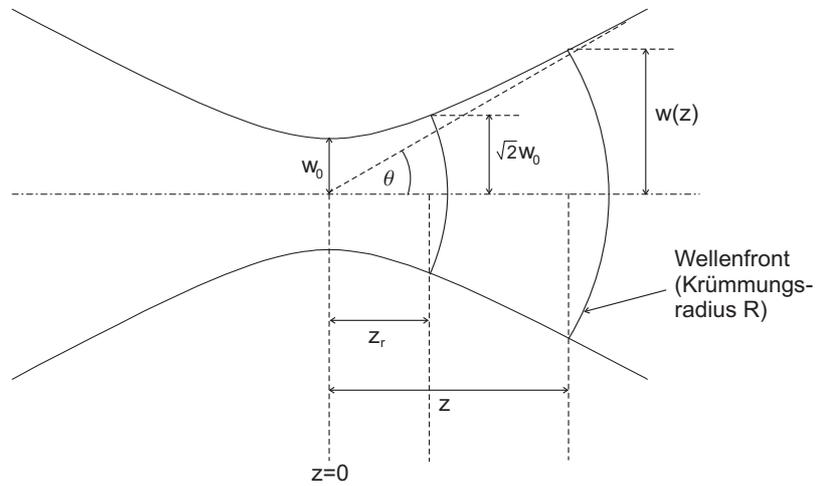


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung eines Gaußschen Strahls mit Ausbreitung in z-Richtung

Nun wird auch deutlich, woher die „Gaußsche Optik“ ihren Namen hat. Bei dem Intensitätsprofil in Formel (2.12) handelt es sich nämlich um eine sog. „Gaußsche Glockenkurve“.

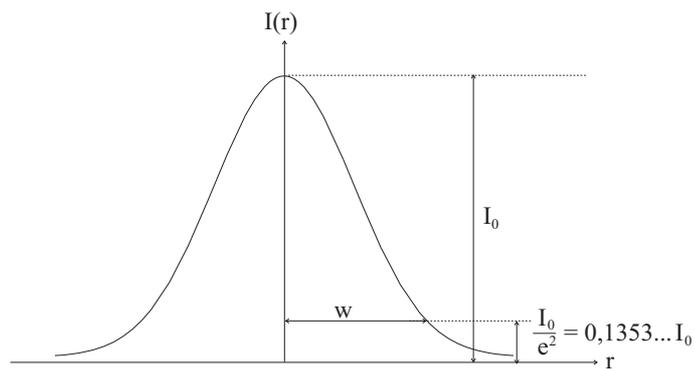


Abbildung 2.6: Intensitätsprofil eines Gaußschen Strahls

2.2.2 Das Verhalten Gaußscher Strahlen an optischen Systemen

Hier soll ein Verfahren aus der geometrischen Optik erläutert werden, mit dessen Hilfe das Verhalten von paraxialen (d.h. achsennahen) Strahlen an optischen Systemen relativ einfach beschrieben werden kann, und das auch in der Gaußschen Optik Anwendung findet. Dazu wird der paraxiale Strahl durch zwei Parameter dargestellt: seinen Achsenabstand r_0 am Punkt $z=0$ und seine Steigung an diesem Punkt, r'_0 ([18], S.107ff.² bzw. [19], S.216ff.³).

Die zentrale Fragestellung dieses Ansatzes ist nun, wie sich diese beiden Parameter in Abhängigkeit von der z -Position, d.h. entlang der Ausbreitungsrichtung, verändern. Im Falle einer freien Ausbreitung der Lichtwelle ist die Beantwortung der Frage sehr einfach: Die Steigung wird sich nicht verändern und die Position wird linear mit der Steigung wachsen. Die Änderung der beiden Parameter kann auch in Vektorschreibweise dargestellt werden (L ist die Länge der freien Propagation, also die neue z -Position):

$$\begin{pmatrix} r_1 \\ r'_1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_0 + Lr'_0 \\ r'_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_0 \\ r'_0 \end{pmatrix} =: M_P(L) \begin{pmatrix} r_0 \\ r'_0 \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

Eine derartige Matrix wird als Transfermatrix oder auch als ABCD-Matrix der freien Propagation bezeichnet. Wie in ([18], S.112ff.) dargestellt ist, kann man z.B. auch eine Transfermatrix für eine ideale dünne Linse angeben. Diese lautet (f die Brennweite der Linse):

$$M_L(f) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

Ebenso existiert eine Matrix für die Brechung an einer ebenen Fläche ([18], S.115):

$$M_L(f) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \frac{n}{n'} \end{pmatrix}, \quad (2.15)$$

wobei n den Brechungsindex des ersten und n' den des zweiten Mediums bezeichnet.

Der große Vorteil dieser Beschreibungsweise ist, dass mehrere aufeinanderfolgende optische Einflüsse auf den Strahl einfach durch Matrizenmultiplikation der entsprechenden Transfermatrizen zusammengefasst werden können ([18], S.114).

²Der Winkelumlaufsinn wurde hier genau entgegengesetzt gewählt, was bei den entsprechenden Elementen im Ergebnis zu einem Vorzeichenwechsel führt.

³Auch dieser Autor arbeitet mit einer etwas anderer Darstellung.

Wie kann man diese Überlegungen nun auf die Gaußsche Optik anwenden? Wie schon oben erwähnt, ist der einzige freie Parameter der Gleichung (2.5) die Strahltaile w_0 . Allerdings wurde dabei der tatsächlichen z-Position dieser Strahltaile keine Beachtung geschenkt. Bezieht man diese Überlegung mit ein, erhält man auch hier zwei freie Parameter, w_0 und z , bzw. mit der Beziehung (2.8) z_r und z , die allerdings etwas anderer Natur sind.

Wenn man das Wertepaar (z_r, z) nun mit einer komplexen Größe umschreibt

$$q(z) := iz_r + z, \quad (2.16)$$

kann man den Parameter q' des Gaußschen Strahls nach einem optischen System mit der Transfermatrix der Form $\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$ folgendermaßen berechnen ([17], S.371):

$$q' = \frac{Aq + B}{Cq + D} \quad (2.17)$$

Dieses sogenannte ABCD-Gesetz wird im folgenden Kapitel für die Berechnung des Strahlengangs im konfokalen Mikroskop ebenfalls von großer Bedeutung sein.

Kapitel 3

Experimentelle Durchführung

3.1 Das konfokale Mikroskop

Da es für die Realisierung einer Einzel-Photonen-Quelle in dem hier vorliegenden Experiment von elementarer Bedeutung ist, genau ein N/V-Zentrum anzuregen, ist die Frage nach einer geeigneten Anregungsoptik entscheidend. Diese sollte möglichst wenig Streulicht von außerhalb des Fokus liegenden Bereichen abbilden.

Dafür eignet sich die von Marvin Minsky [20] entwickelte konfokale Mikroskopie, da bei ihr Streulicht von lateral oder axial außerhalb des Fokus liegenden Punkten durch den Einsatz einer Lochblende gezielt unterdrückt wird. Dabei wird nicht nur das von der Probe emittierte, sondern auch das beleuchtende Licht durch eine Lochblende geschickt, wodurch eine zusätzliche Unterdrückung des Hintergrunds erreicht wird. Bei der Verwendung eines Lasers ist jedoch keine zweite Lochblende nötig, da es sich hierbei schon um stark gebündeltes Licht handelt. Ein möglicher Aufbau eines solchen Mikroskops ist in Abb. 3.1 dargestellt. Aus der Übereinstimmung von Anregungs- und Detektionsfokus leitet sich auch der Name „konfokale Mikroskopie“ ab.

Da bei dieser Methode jedoch jeweils nur ein kleiner Bereich des zu untersuchenden Objekts abgebildet wird, muss die Probe abgerastert und das Gesamtbild anschließend zusammengesetzt werden. Die verschiedenen Möglichkeiten, dieses Abrastern durchzuführen, werden nach einigen Überlegungen zur Auflösung des konfokalen Mikroskops noch genauer erläutert (s. Abschnitt 3.1.2). Nach einem kurzen Überblick über die Eigenschaften der verwendeten Komponenten werden mit deren Hilfe und unter Verwendung des ABCD-Formalismus die Abmessungen des hier aufgebauten konfokalen Mikroskops berechnet. Abschließend findet noch eine kurze Justage-Anleitung für das konfokale Mikroskop ihren Platz.

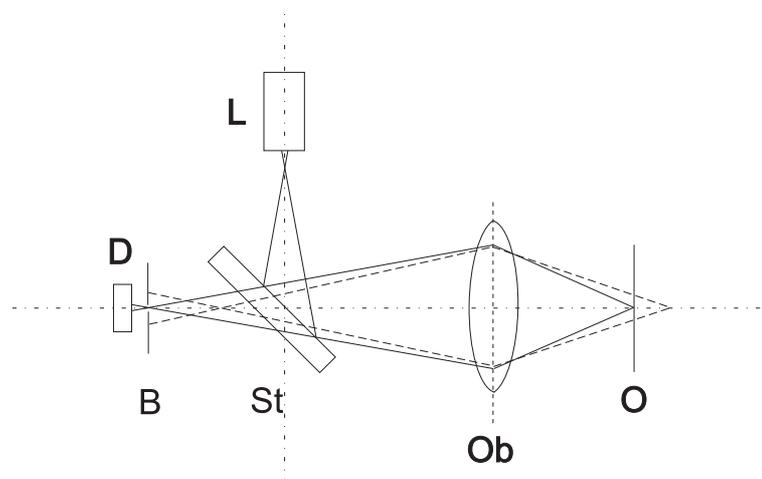


Abbildung 3.1: Konfokales Reflexionsmikroskop; L: Laser, D: Detektor, B: Blende, St: Strahlteiler, Ob: Objektiv, O: Objekt; die gestrichelte Linie symbolisiert den Strahlengang eines außerhalb des Fokus liegenden Punktes.

3.1.1 Auflösung des konfokalen im Vergleich zum konventionellen Mikroskop

Nach dem Sparrow-Kriterium können zwei verschiedene Punkte noch getrennt aufgelöst werden, solange ihre gemeinsame Intensitätsfunktion ein Minimum besitzt. Dies ist die engste Definition von Auflösung, die möglich ist, da eine Intensitätsfunktion ohne Minimum offensichtlich nicht mehr als von zwei Punkten stammend identifiziert werden kann. Deshalb soll hier auf weitere Auflösungskriterien, wie z.B. das Rayleigh-Kriterium [21], nicht näher eingegangen werden.

Der minimale Abstand zweier Punkte, also das laterale Auflösungsvermögen eines konventionellen Mikroskops, lautet mit dem Sparrow-Kriterium [13]:

$$y = \frac{0,47\lambda}{NA}, \quad (3.1)$$

wobei λ die Wellenlänge des Anregungslichts und NA die numerische Apertur des verwendeten Mikroskopobjektivs bezeichnet ($NA = n \sin \Theta$, mit n als Brechungsindex des umgebenden Mediums und Θ als halber Öffnungswinkel des maximal abbildbaren Strahls).

Für die konfokale Mikroskopie gelangt Dräbenstedt in [13] zu folgendem Ergebnis für die laterale Auflösung:

$$y = \frac{0,37\lambda}{NA} \quad (3.2)$$

Die geringe Abweichung der beiden Werte ist jedoch von untergeordneter Bedeutung, weil weniger die laterale denn die axiale Auflösung durch die Verwendung eines konfokalen Mikroskops verbessert wird.

Dabei ergibt sich das axiale Auflösungselement Δr nach Pawley [22]:

$$\Delta r = \frac{\lambda n}{4NA^2} \quad (3.3)$$

3.1.2 Begründung des verwendeten Mikroskopaufbaus

Unter Verwendung des konfokalen Prinzips sind natürlich immer noch viele verschiedene Varianten des Mikroskopaufbaus denkbar.

Zum einen kann man, wie in Abb. 3.1 gezeichnet, die Reflexion oder Streuung der zu untersuchenden Probe zur Detektion verwenden, zum anderen ergibt sich durch die Benützung zweier Mikroskopobjektive die Möglichkeit, das durch die Probe transmittierte Licht zu detektieren ([23], S.50; siehe Abb. 3.2).

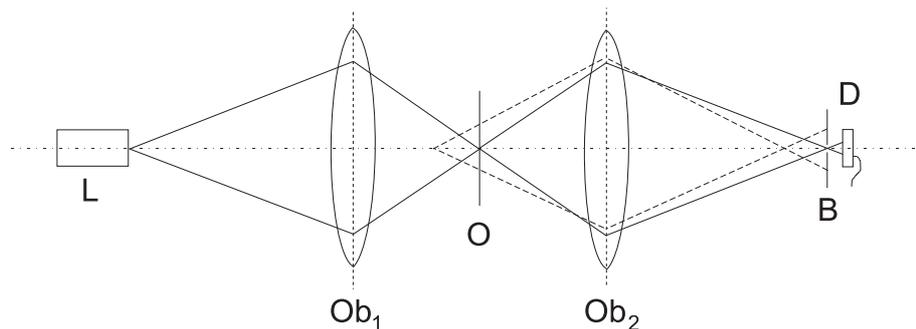


Abbildung 3.2: Konfokales Transmissionsmikroskop; L: Laser, D: Detektor, B: Blende, Ob_{1/2}: Objektiv, O: Objekt; die gestrichelte Linie symbolisiert wieder den Strahlengang eines außerhalb des Fokus liegenden Punktes.

In dem hier beschriebenen Experiment wurde ein Reflexionsmikroskop benutzt, da es sich als wesentlich einfacher erweist, dessen Aufbau zu justieren.

Um die oben erwähnten Vorzüge des konfokalen Prinzips nutzen zu können, ist es von zentraler Bedeutung, dass der Fokus des anregenden Strahls genau mit dem des reflektierten Lichts zusammenfällt. Im verwendeten Aufbau wurde für diese Justage eine Abbildung der beiden Foki durch ein zweites Hilfsobjektiv hinter dem eigentlichen Objektiv vorgenommen, womit die genaue Übereinanderlagerung der beiden Foki zumindest in x-y-Richtung re-

lativ problemlos möglich war (genauer siehe Abschnitt 3.1.5). Dieser Trick ist bei einem Transmissionsmodell offenbar nicht anwendbar, weswegen man sich hierbei anders und wahrscheinlich umständlicher behelfen müsste.

Eine weitere Gestaltungsmöglichkeit des Aufbaus liegt in der Wahl des Verfahrens zur Bilderzeugung. Dabei wird entweder die Probe oder der anregende Strahl bewegt. Während die verschiedenen Möglichkeiten, den Strahl zu bewegen (über zwei Spiegel oder durch eine sog. Nipkow-Scheibe, näheres dazu in [23], S.50ff.), eines hohen Aufwands bedürfen und hohe Anforderungen an die Abbildungsfehler des Objektivs stellen, ist die Bewegung des Objekts z.B. mit einer x-y-z-Piezostufe relativ einfach durchzuführen. Deshalb wurde bei diesem Experiment auch dieser Weg beschritten.

3.1.3 Eigenschaften der verwendeten Komponenten

Als Anregungslichtquelle wurde ein frequenzverdoppelter Nd:YVO₄-Laser mit Wellenlänge 532 nm (grünes Licht) verwendet, da N/V-Zentren diese Wellenlänge relativ gut absorbieren [5].

Der Waist des Lasers an einer bestimmten z-Position wird durch eine an dieser Stelle schrittweise ins Strahlprofil gefahrene Rasierklinge bestimmt, die dabei einen Teil des Strahls „abschneidet“. Anschließend wird die Leistung des noch verbleibenden Lichts gemessen. Wenn man nun die verbleibende Leistung gegen die x-Position der Rasierklinge anträgt (s. Abb. 3.3), ergibt sich die Integrationsfunktion des Gaußschen Intensitätsprofils (s. Abb. 2.6) des Laserstrahls.

Durch einen entsprechenden Fit dieser Integrationsfunktion, der sogenannten „Fehlerfunktion“, an die Messpunkte kann der Waist an der betreffenden z-Position ermittelt werden. Nachdem der Strahlradius so an verschiedenen Punkten bekannt ist, kann durch einen Fit gemäß Gl. (2.7) der minimale Waist und dessen Position z_0 bezüglich der Laseraustrittsschulter bestimmt werden (s. Abb. 3.4). Daraus lassen sich dann mit Hilfe der Formeln (2.8) bis (2.10) alle weiteren Strahlparameter berechnen.

Man erhält dabei:

$$w_0 = (484 \pm 3) \mu\text{m} \quad z_0 = (-745 \pm 7) \text{ mm} \quad z_r = (1,38 \pm 0,02) \text{ m} \quad (3.4)$$

Als Strahlteiler kam ein dielektrischer dichroischer Spiegel (HR 532 nm / HT 590-700 nm /45°) von Laseroptik zum Einsatz, dessen winkelabhängige Transmission des 532 nm-Laserlichts bestimmt wurde. Dabei ergab sich ein Minimum an Transmission bei ca. 52° (s. Abb. 3.5).

Trotz dieser etwas anderen Lage des Minimums wurde der Strahlteiler unter 45° eingebaut, um sich die Justage wesentlich zu erleichtern. Zur auch deshalb nötigen zusätzlichen Unterdrückung des Laserlichts im Strahlengang 1

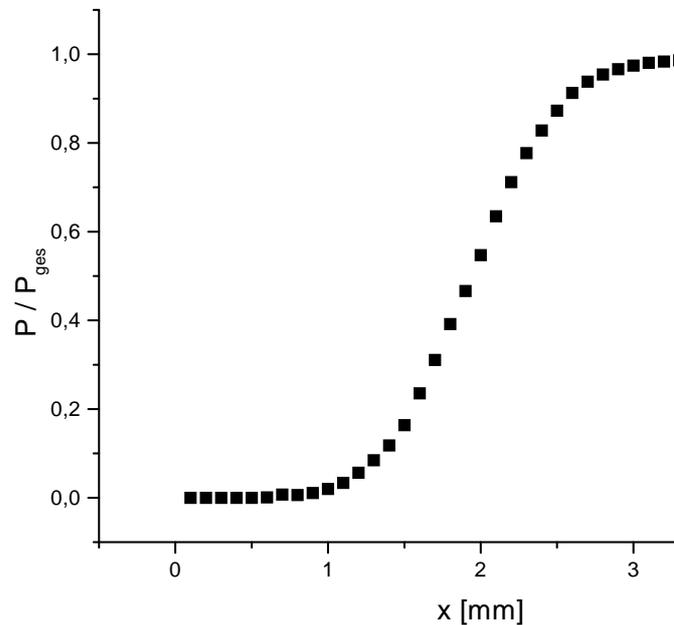


Abbildung 3.3: Laser-Waistmessung an einer z-Position, normierte gemessene Leistung angetragen gegen x-Position der Rasierklinge

(s. Abb. 3.12) dient ein Kantenfilter RG590, dessen Wellenlängenabhängigkeit in Abb. 3.6 dargestellt wird. Durch dieses Filter wird einerseits eine gute Unterdrückung des Anregungslichts erreicht und andererseits das gesamte erwartete Fluoreszenzspektrum (im Bereich von ca. 600 nm bis 750 nm, [24], s. auch Abschnitt 3.3) der N/V-Zentren durchgelassen.

Ebenfalls von Bedeutung sind die Eigenschaften des verwendeten Objektivs von Edmund Scientific. Die Entscheidung fiel dabei auf das 60-fach vergrößernde Objektiv, da es die stärkste Vergrößerung und größte numerische Apertur ohne Verwendung einer Immersionsflüssigkeit aufweist. Mit einem Immersionsobjektiv hätte der Aufbau technisch nicht so einfach verwirklicht werden können, weil dann das Objekt waagrecht hätte liegen müssen. Die Charakteristika des 60 \times Objektiv lauten (wobei die Objekt- und die Bildposition den allgemeinen DIN-Normen entsprechen):

Brennweite	f=3,09 mm
Numerische Apertur	NA=0,85
Objektposition (von der Einschraubschulter entfernt)	x=45 mm
Bildposition (ab dem Objekt gemessen)	y=195 mm

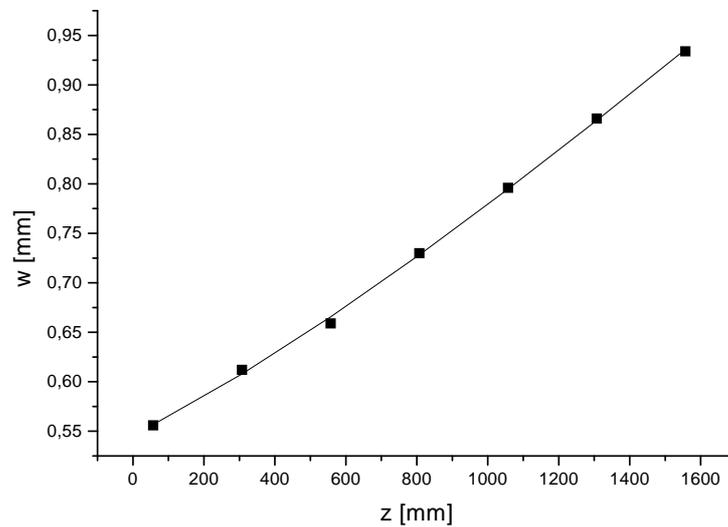


Abbildung 3.4: Gemessener Laser-Waist in Abhängigkeit von der z -Position; durchgezogene Linie: Fit gemäß Gleichung (2.7)

Wie schon in Abschnitt 3.1.2 erwähnt, wird in diesem Experiment nicht der anregende Strahl, sondern das Objekt selbst bewegt. Die dafür nötige x - y -Verschiebung wird mit einem Piezotisch der Marke PXY 100 SG der Firma Piezosysteme Jena bewerkstelligt, der einen Verstellbereich von $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$ mit einer Auflösung von 80 nm besitzt. Dagegen führt man die z -Verschiebung mit einem einfachen Linearverschiebetisch mit einem Schrittmotor mit einer Reproduzierbarkeit von ca. $200\text{-}500 \text{ nm}$ durch.

Die Aufgabe der für ein konfokales Mikroskop nötigen Blende (siehe z.B. Abb. 3.1) wird in diesem Experiment von einer Einmoden-Glasfaser mit einem Moden-Feld-Durchmesser von $4 \mu\text{m}$ übernommen. Der sog. Moden-Feld-Durchmesser legt die Strahltaile des aus der Faser austretenden Lichts fest.

Die verwendeten Detektoren wurden von Patrick Zarda im Rahmen seiner Diplomarbeit gebaut [1]. Das eigentliche Kernstück eines solchen Detektormoduls stellt dabei eine Si-SPAD (Silicon Single Photon Avalanche Diode) dar, mit der man einzelne Photonen mit großer Wahrscheinlichkeit (ca. 50%) und hoher zeitlicher Auflösung von ca. 1 ns nachweisen kann. Die Totzeit dieser Diode liegt je nach angelegtem Ladestrom im Bereich von 1 bis $2 \mu\text{s}$.

Zuletzt sei noch die Herkunft und die Behandlung der untersuchten Diamanten erwähnt. Die synthetischen Ib-Diamanten stammen von Drukker

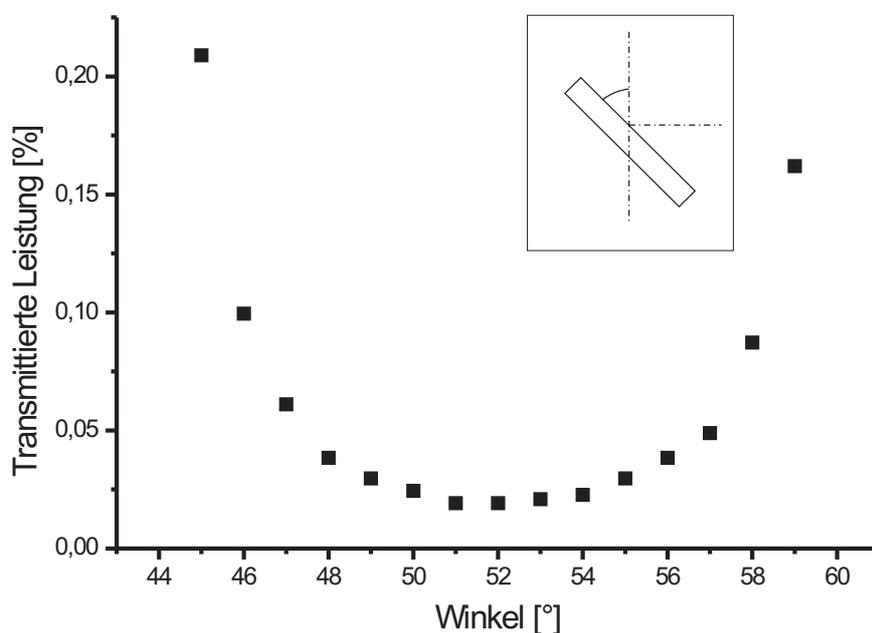


Abbildung 3.5: Transmission des Strahlteilers in Abhängigkeit von seinem Winkel gegenüber dem Strahl; das kleine Bild zeigt, welcher Winkel gegenüber den optischen Achsen gemessen wurde.

International, Niederlande. Ein Teil von ihnen wurde am Forschungsreaktor in Garching hochenergetischen Neutronen mit unterschiedlichen Bestrahlungsstärken zwischen $2 \cdot 10^{11}$ und $6 \cdot 10^{13}$ n/cm² ausgesetzt, um Kohlenstoffatome aus dem Diamantgitter herauszuschlagen und damit die Fehlstellendichte zu erhöhen. Anschließend wurden die Diamantproben zwischen 15 Minuten und einer Stunde bei einer Temperatur von ca. 900 °C geheizt. Dadurch können die erzeugten Fehlstellen die Anregungsenergie-Barriere überwinden und zu der energetisch günstigeren Position neben den Stickstoffatomen diffundieren. Die Folge ist also eine erhöhte N/V-Zentren-Dichte im Diamant (zu den Präparationsbedingungen s. auch Abschnitt 2.1.1).

Der in Abschnitt 3.2.1 erwähnte Diamant Nr. 6 erhielt dabei eine Bestrahlung von $2 \cdot 10^{11}$ n/cm² und wurde 17 min erhitzt. Ansonsten handelt es sich bei den für die Messungen verwendeten Diamanten jedoch immer um vollkommen unbehandelte¹.

¹Die dortige Dichte von N/V-Zentren reichte bereits aus, siehe auch Abschnitt 3.2.2.

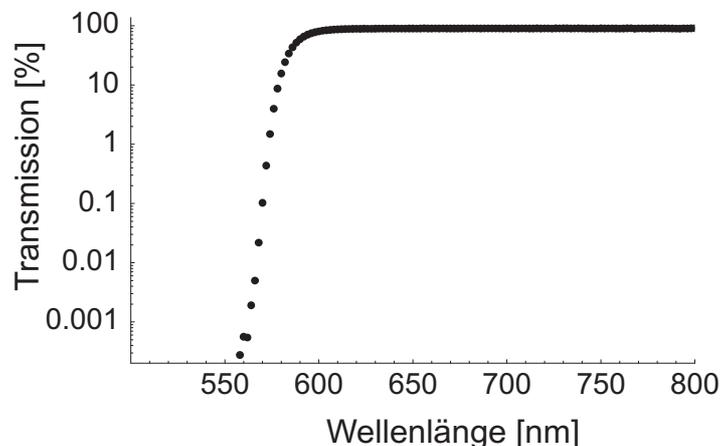


Abbildung 3.6: Logarithmisch angetragene Transmission des RG590 in Abhängigkeit von der Wellenlänge; unterhalb von 550 nm wurde die gemessene Transmission aufgrund von Messungenauigkeiten negativ

3.1.4 Berechnung der Abmessungen des Mikroskops

Nachdem nun die grundlegenden Eigenschaften der wichtigsten Komponenten des konfokalen Mikroskops bekannt sind, lassen sich damit die genauen Abmessungen und benötigten Abstände des Aufbaus bestimmen.

Bei der anschließenden Rechnung wird zunächst vom Objektiv ausgegangen und dessen Hauptebenen und die sich daraus ergebenden Strahlparameter berechnet. Im nächsten Schritt wird dann unter Verwendung des ABCD-Formalismus (s. Abschnitt 2.2.2) versucht, mit Hilfe einer Linse die Strahlparameter des Objektivs an die des Lasers anzupassen. Nachdem noch sichergestellt wurde, dass im Diamant keine unterschiedliche Strahltaillenschiebung für grünes² und rotes³ Licht erfolgt, wird schließlich noch der Strahlversatz durch den Strahlteiler und den Rotglasfilter bestimmt. Somit sind alle notwendigen Daten bekannt, um das Mikroskop gemäß Abb. 3.7 aufbauen zu können.

Für die Berechnung der Hauptebenen des Mikroskops werden folgende

²Dies ist das Licht des anregenden Lasers.

³Dabei handelt es sich um das Fluoreszenzlicht der N/V-Zentren.

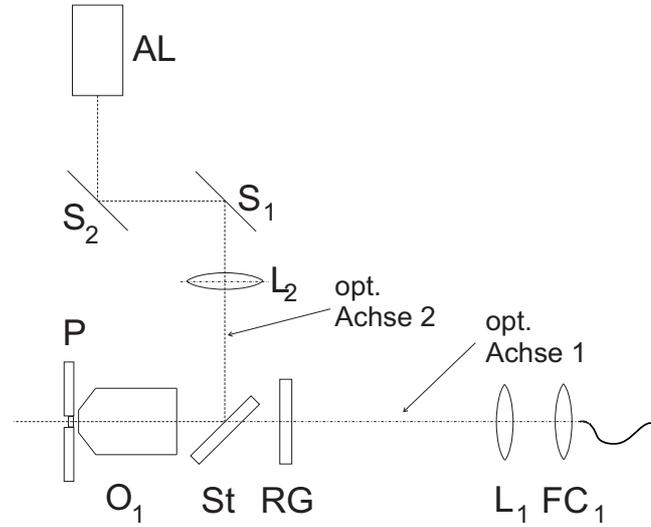


Abbildung 3.7: Konfokales Mikroskop; AL: Anregungslaser, $S_{1/2}$: Spiegel, $L_{1/2}$: Linsen, FC_1 : Faserkoppler, RG: Filter RG590, St: Strahlteiler, O_1 : Objektiv, P: Piezotisch mit eingeklemmtem Diamant

bekannte Formeln benötigt:

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{g} + \frac{1}{b} \quad M = \frac{b}{g}, \quad (3.5)$$

wobei f die Brennweite, g die Gegenstandsweite, b die Bildweite und M die Vergrößerung bezeichnet. In der anschließenden Rechnung liegt der Nullpunkt an der Stelle des Objekts. Die Lage der Hauptebenen bzgl. f , g und b ist aus Abb. 3.8 ersichtlich. Z.B. erkennt man daraus die Beziehung $b = y - h_2$ (y : Bildposition, h_2 : zweiter Hauptebenenabstand).

Aus den Formeln (3.5) sowie aus der obigen Beziehung für die Bildposition y lassen sich nun die Lage der beiden Hauptebenen in Abhängigkeit von der Vergrößerung, der Brennweite und der Bildposition bestimmen:

$$h_1 = f\left(\frac{1}{M} + 1\right) \quad h_2 = y - f(1 + M) \quad (3.6)$$

Durch Einsetzen der entsprechenden Werte aus Abschnitt 3.1.3 erhält man:

$$h_1 = 3,1415 \text{ mm} \quad h_2 = 6,51 \text{ mm} \quad (3.7)$$

Aus der Lage der Hauptebenen kann nun die ABCD-Matrix des Objektivs bestimmt werden. Diese setzt sich zusammen aus einer freien Propagation vom Objekt bis zur ersten Hauptebene, aus einer Linsenmatrix mit

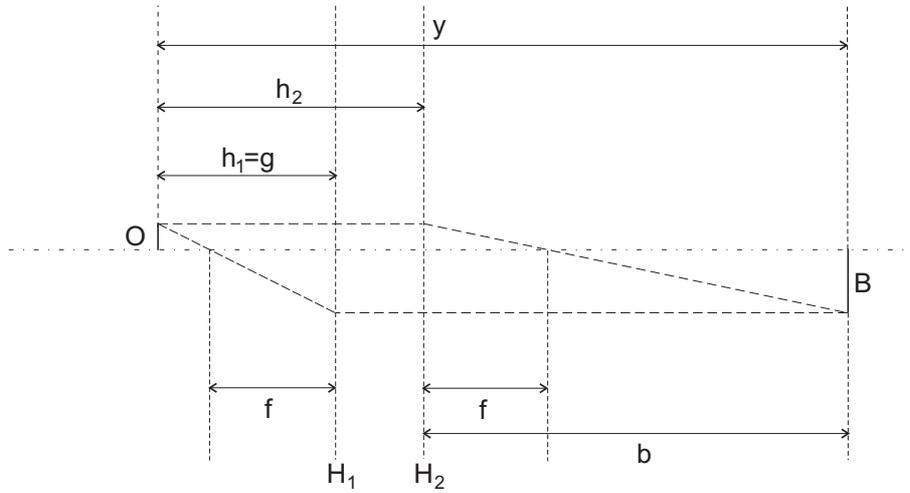


Abbildung 3.8: Skizze der charakteristischen Größen des Objektivs; O: Objekt, B: Bild, f : Brennweite, g : Gegenstandsweite, b : Bildweite, H_1 : erste Hauptebene, H_2 : zweite Hauptebene, h_1 : erster Hauptebenenabstand, h_2 : zweiter Hauptebenenabstand, y : Bildposition aus den Objektivangaben

Brennweite f und aus einer freien Propagation von der zweiten Hauptebene bis zur Objektivschulter. Damit können aus den Strahlparametern vor dem Objektiv die entsprechenden Parameter danach ermittelt werden. In Formeln ausgedrückt, lautet der Ausdruck dann (s. Abschnitt 2.2.2):

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & x - h_2 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & h_1 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Einsetzen der Werte für x , h_2 , f und h_1 ⁴ liefert:

$$\begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -11,46 & 2,500 \cdot 10^{-3} \text{ m} \\ -323,6 \text{ m}^{-1} & -16,67 \cdot 10^{-3} \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

Zunächst muss festgelegt werden, welcher Anteil von der vom Objekt ausgehenden Gaußmode aufgesammelt werden soll. Erst dann kann die Strahltaille des roten und des grünen Lichts aus der numerischen Apertur des Objektivs ermittelt werden. Diese ist definiert als Blendendurchmesser durch Brennweite.

Der Prozentsatz der an dieser Stelle aufgesammelten Gaußmode beträgt:

$$\eta = 1 - e^{-\frac{2R^2}{w^2}}, \quad (3.10)$$

⁴Alle Werte sind in m ausgedrückt, um sich späteres Umrechnen zu ersparen.

wobei R den halben Blendendurchmesser bezeichnet und w den dortigen Waist des Gaußschen Strahls. Nach $\frac{R}{w}$ aufgelöst ergibt das:

$$\gamma := \frac{R}{w} = \sqrt{-0,5 \ln(1 - \eta)} \quad (3.11)$$

Für die Forderung einer Aufsammeleffizienz von 99,5% ergibt sich somit $\gamma = 1,628$. Das heißt, dass der Blendenradius um das 1,6-fache größer ist, als der Waist an dieser Stelle.

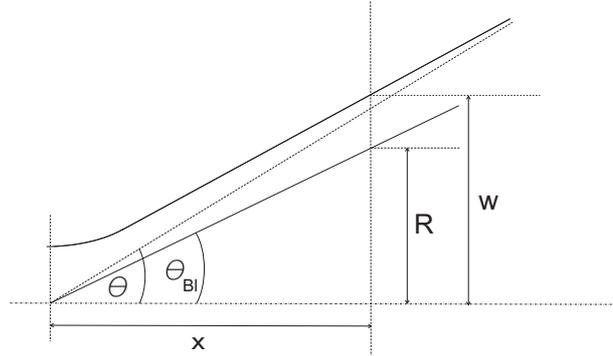


Abbildung 3.9: Skizze der relevanten Größen an der Stelle der Objektivblende; Θ : Divergenzwinkel des Strahls, Θ_{Bl} : Aufsammelwinkel des Objektivs, R : Blendenradius, w : Waist des Strahls an der Stelle der Blende, x : Hilfslänge für die Berechnung

Aus Abbildung 3.9 sind folgende geometrische Beziehungen ersichtlich:

$$\tan \Theta = \frac{w}{x} \quad \tan \Theta_{Bl} = \frac{R}{x} \quad (3.12)$$

Daraus folgt nun für den Divergenzwinkel Θ :

$$\tan \Theta = \frac{\tan \Theta_{Bl}}{\gamma} \quad (3.13)$$

Aus Gleichung (2.10) folgt:

$$w_0 = \frac{\lambda}{\pi \tan \Theta}, \quad (3.14)$$

woraus sich mit $NA = n \cdot \sin \Theta_{Bl}$ und unter Berücksichtigung von Formel 3.13 folgende Beziehung ergibt:

$$w_0 = \frac{\lambda \gamma}{\pi \tan(\sin^{-1}(NA))} \quad (3.15)$$

Für die Anregungswellenlänge von 532 nm ergibt sich damit eine Strahl-taille von $w_{0g} = 235,1$ nm, und für eine rote Wellenlänge von beispie-lsweise 670 nm⁵ $w_{0r} = 296,1$ nm. Diese Größe der Strahl-taille bestimmt die Auflösung in x-y-Richtung und stimmt sehr gut mit den Werten über-ein, die sich aus der Auflösungsformel (3.2) ergeben ($w_{0g} = 231,5$ nm und $w_{0r} = 291,6$ nm).

Die Auflösung in z-Richtung für grünes bzw. rotes Licht wird in gewisser Weise von der Rayleigh-Länge z_r beeinflusst, für die man gemäß Formel (2.8) folgende Werte erhält: $z_{rg} = 326,4$ nm und $z_{rr} = 411,1$ nm. Die sich aus der Auflösungsformel für die z-Richtung (3.3) ergebenden Werte sind beidesmal ca. halb so groß.

Nachdem nun die Strahlparameter vor dem Objektiv bekannt sind, die die Auflösung des Mikroskops festlegen, sind die Parameter hinter dem Objektiv für den weiteren Mikroskopaufbau von erheblicher Bedeutung. Dafür eignet sich die in Abschnitt 2.2.2 eingeführte Darstellungsart für Gaußsche Strahlen am besten, bei der der Strahl durch eine komplexe Größe $q(z) := iz_r + z$ beschrieben wird.

Da die Größe z_r bereits berechnet wurde, kann q an der Position des Objekts angegeben werden:

$$q_g(0) = i \cdot 3,264 \cdot 10^{-7} \text{ m} \quad q_r(0) = i \cdot 4,111 \cdot 10^{-7} \text{ m} \quad (3.16)$$

Den Strahl nach dem Objektiv erhält man nun durch die Anwendung seiner ABCD-Matrix (3.9) auf $q(0)$ gemäß Gl. (2.17). Dabei ergibt sich aufgrund der Konstruktion der Matrix die Beschreibung des Strahls an der Position der Einschraubschulter.⁶

$$q_g^*(x) = -0,1500 \text{ m} + i \cdot 1,175 \cdot 10^{-3} \text{ m} \quad (3.17)$$

$$q_r^*(x) = -0,1500 \text{ m} + i \cdot 1,480 \cdot 10^{-3} \text{ m} \quad (3.18)$$

Aus der obigen komplexen Form des Strahls können wieder alle Strahlparameter berechnet werden, wie z.B. w_0^* und $w^*(x)$ (mit den Gleichungen (2.8) und (2.7)).

$$w_{0g}^* = 14,11 \text{ } \mu\text{m} \quad w_{0r}^* = 17,76 \text{ } \mu\text{m} \quad (3.19)$$

⁵Dies ist die Wellenlänge des roten Justierlasers, die auch im Spektrum des N/V-Zentrums enthalten ist.

⁶Der Stern an den folgenden Parametern dient nur zur Unterscheidung vom Strahl vor dem Objektiv.

$$w_g^*(x) = 1,801 \text{ mm} \quad w_r^*(x) = 1,801 \text{ mm} \quad (3.20)$$

Da die Strahlen direkt an der Einschraubschulter somit nur 3,6 mm „Waist“ haben, wird nicht zu viel durch das ca. 6 mm große Austrittsloch des Objektivs abgeschnitten.

Nun sollen über eine Linse Objektiv- und Lasermode aneinander angepasst werden, wobei der Abstand der Linse zum Laser und zur Bildposition des Objektivs variabel ist (s. Abb. 3.10).

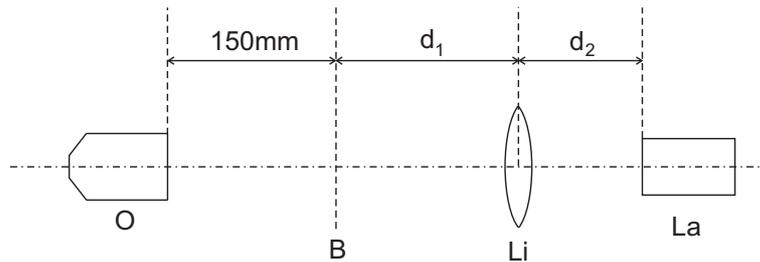


Abbildung 3.10: Linsenposition bzgl. Laser und Objektiv; O: Objektiv, B: Bildebene des Objektivs, Li: Linse, La: Laser

Zur Anpassung an die eben berechneten Parameter muss die Lasermode ebenfalls komplex dargestellt werden. Dabei ergibt sich mit Gleichung (3.4) der Strahl an der Austrittsschulter des Lasers:

$$q_l(a) = -0,745 \text{ m} + i \cdot 1,38 \text{ m} \quad (3.21)$$

Nun wird auf den Objektivstrahl am Punkt der Linse $q_g^*(x+0,15+d_1)$ deren Transformationsmatrix (2.14) angewandt und anschließend der Abstand d_2 addiert, um den an der Linse gebrochenen Objektivstrahl am Punkt der Laseraustrittsschulter zu erhalten. Davon wird dann die Darstellung des Laserstrahls am selben Punkt, $q_l(a)$, abgezogen, und der Absolutbetrag des Ergebnisses minimiert, um eine möglichst gute Übereinstimmung zu erreichen. Dabei ergibt sich für eine Linsenbrennweite von 50 mm:

$$d_1 = 50,9 \text{ mm} \quad d_2 = 321 \text{ mm} \quad (3.22)$$

Nun sind also der Anregungslaser und das Objektiv aufeinander abgestimmt. Ebenso muss der Faserkoppler, der das Fluoreszenzlicht aufsammeln soll, an das Objektiv angepasst sein. Dabei soll ein möglichst paralleler Strahl mit ca. 1 mm Waist erzeugt werden, da dieser sich am besten für den verwendeten Faserkoppler eignet.

Wenn man dafür eine 75 mm-Linse verwenden will, erreicht man bei einem Abstand von 77 mm zwischen der Bildebene des Objektivs und der Linse die

gewünschten Strahleigenschaften relativ genau. Es ergibt sich dabei⁷ nämlich ein lokaler Waist an der Stelle der Linse von $925 \mu\text{m}$ und eine Rayleigh-Länge von $1,33 \text{ m}$.

Natürlich muss nun noch sichergestellt werden, dass sich rote und grüne Strahlteile im Diamant beim Verfahren der Probe in Richtung der optischen Achse nicht unterschiedlich verschieben, um so auch Bilder innerhalb des Diamants aufnehmen zu können. Wie aus der Brechungsmatrix (2.15) ersichtlich ist, ergibt sich die komplexe Darstellung des gebrochenen Strahls lediglich aus der Multiplikation des ursprünglichen Strahls mit dem Verhältnis der beiden Brechungsindizes. Da der Brechungsindex von Diamant für verschiedene Wellenlängen jedoch lediglich zwischen $2,41$ und $2,43$ schwankt, ist die gegenseitige Verschiebung der beiden Strahlteilen vernachlässigbar (weniger als 1%).

Zu guter Letzt muss noch der Strahlversatz bedacht werden, den Strahlteiler und Rotglasfilter für das Fluoreszenzlicht bewirken.

Für das 3 mm dicke Rotglasfilter gestaltet sich diese Aufgabe relativ einfach, da es senkrecht zur optischen Achse steht. Seine optische Weglänge ergibt sich somit einfach zu $z_{opt} = n \cdot z_{geo}$. Mit z_{geo} als geometrische Weglänge von 3 mm und $n = 1,5$ als Brechungsindex von Glas ergibt sich eine optische Weglänge von 4 mm und damit eine Weglängendifferenz von $\Delta z = 1,5 \text{ mm}$. Das heißt, dass die ursprünglich berechnete Strecke durch das Rotglasfilter um $1,5 \text{ mm}$ verkürzt wird.

Beim Strahlteiler ist die Weglängendifferenz etwas komplizierter zu berechnen, da er unter 45° im Strahlengang steht (s. Abb. 3.11).

Zunächst wird die Strecke bestimmt, die das Licht im $6,5 \text{ mm}$ dicken Strahlteiler zurücklegt:

$$\alpha = \sin^{-1} \left(\frac{\sin 45^\circ}{n} \right) = 28,13^\circ \quad l = \frac{d}{\cos \alpha} = 7,37 \text{ mm} \quad (3.23)$$

Damit wird nun die optische und die geometrische Weglänge berechnet:

$$z_{opt} = l \cdot n = 11,06 \text{ mm} \quad z_{geo} = l \cdot \cos \beta = 7,05 \text{ mm} \quad \Delta z = 4,01 \text{ mm} \quad (3.24)$$

Der Strahlteiler bewirkt also eine zusätzliche Verkürzung der oben berechneten Entfernung zwischen Objektiv und Linse von ca. 4 mm .

Darüberhinaus kommt es zu einem Versatz des Strahls in x-Richtung von:

$$\Delta x = l \cdot \sin \beta = 2,14 \text{ mm} \quad (3.25)$$

⁷Man benötigt hierfür die Formeln (2.14), (2.17) und (2.7).

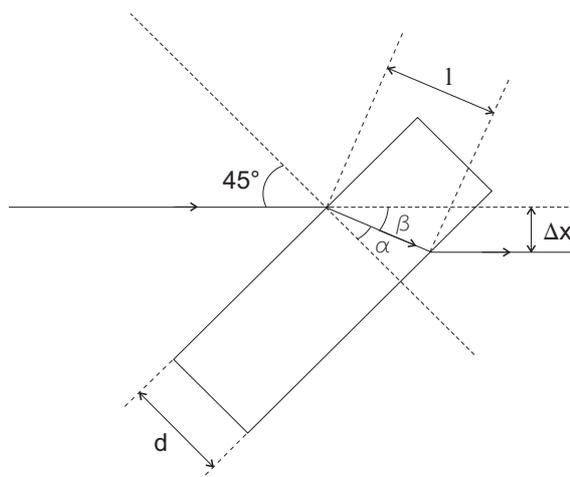


Abbildung 3.11: Strahlteilerversatz; der Lichtweg ist durch Pfeile angedeutet

3.1.5 Justage des Mikroskops

Nachdem nun alle Einflüsse auf den Strahlverlauf innerhalb des Mikroskops berücksichtigt wurden, sind die optimalen Abstände zwischen den einzelnen Komponenten bekannt, und das Mikroskop kann aufgebaut werden (s. Abb. 3.12).

Da es nicht möglich ist, den tatsächlichen Aufbau exakt nach den theoretisch berechneten Abmessungen aufzubauen, kommt es zu geringfügigen Auflösungsverlechterungen. Anhand der in Abschnitt 3.2.1 gezeigten Aufnahmen wird jedoch deutlich, dass trotzdem noch die erwünschte Einzelauflösung von N/V-Zentren möglich ist.

Die Strahlhöhe des Mikroskops wird dabei durch die Höhe des Piezotischbaus vorgegeben und beträgt 146 mm. Für die exakte Justage beim Aufbau des Mikroskops ist es nötig, sich genau zu überlegen, in welcher Reihenfolge man die einzelnen Komponenten einbaut. Dabei hat sich folgendes Vorgehen bewährt:

- Einstellung der optischen Achse 1 durch den Faserkoppler 1, FC₁, indem mit dem Justierlaser 1, JL₁, Licht entgegen der Strahlrichtung eingestrahlt wird⁸

⁸Als Kriterium zum Einstellen gilt, dass die Höhe des Strahls konstant ist, und der Strahl bzgl. des optischen Tisches direkt über einer Lochreihe läuft. Dabei wählt man eine Lochreihe, da man bzgl. einer Lochreihe relativ einfach justieren kann und man annimmt, dass diese einigermaßen gerade verläuft.

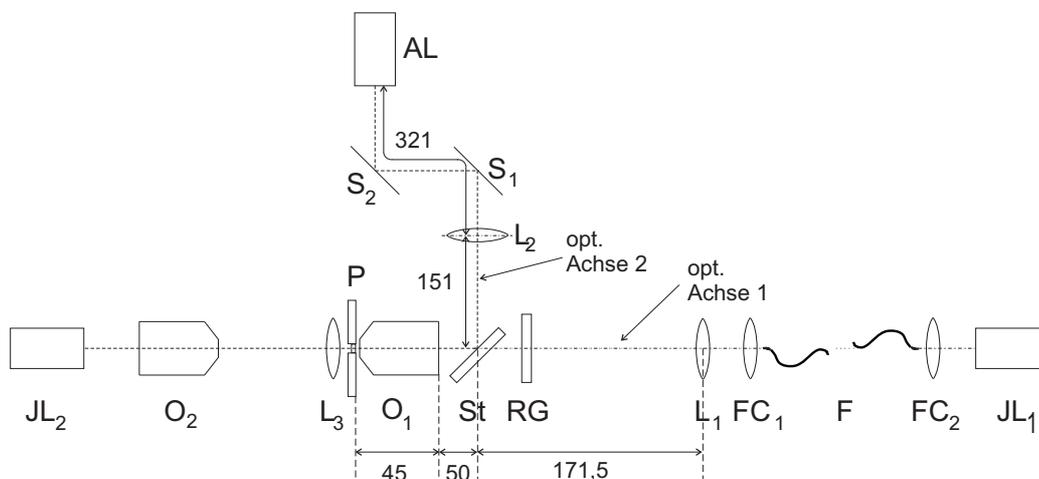


Abbildung 3.12: Konfokales Mikroskop mit den berechneten Abmessungen in mm; AL: Anregungslaser, $S_{1/2}$: Spiegel, $L_{1/2/3}$: Linsen, $JL_{1/2}$: Justierlaser, $FC_{1/2}$: Faserkoppler, F: Faser, RG: Filter RG590, St: Strahlteiler, $O_{1/2}$: Objektive, P: Piezotisch mit eingeklemmtem Diamant; nach der Justage wird anstelle des ersten Justierlasers ein Detektor plaziert und der zweite Justierlaser entfernt

- Ausrichtung des Piezotischs an der optischen Achse 1, sodass einerseits der Strahl des Justierlasers 1 mittig hindurch trifft und andererseits der Rückreflex eines an den Piezotisch gehaltenen Spiegelplättchens wieder mittig auf den Faserkoppler 1 trifft
- Einbau des Objektivs 1, O_1 , und Ausrichtung an der optischen Achse 1, bis der Strahl wieder mittig durch den Piezotisch und der Rückreflex des an das Objektiv gehaltenen Spiegelplättchens mittig auf den Faserkoppler 1 trifft
- Einstellung der beiden Spiegel S_1 und S_2 , bis die optische Achse 2 senkrecht zur optischen Achse 1 steht⁹
- Einsetzen der Linse 2, L_2 , sodass der Strahl des Anregungslasers mittig hindurch geht, der Rückreflex auf Spiegel 1, S_1 , sich mit dem Strahl deckt und der Brennpunkt an der berechneten Stelle sitzt
- Einbau des Strahlteilers, sodass die Achse 2 auf die Achse 1 abgebildet wird, d.h. der grüne Laserstrahl mittig durch das Objektiv hindurchgeht

⁹Als Einstellungskriterium dafür gilt, dass der grüne Laserstrahl entlang einer Lochreihe des optischen Tisches läuft, die senkrecht zur Lochreihe der Achse 1 steht.

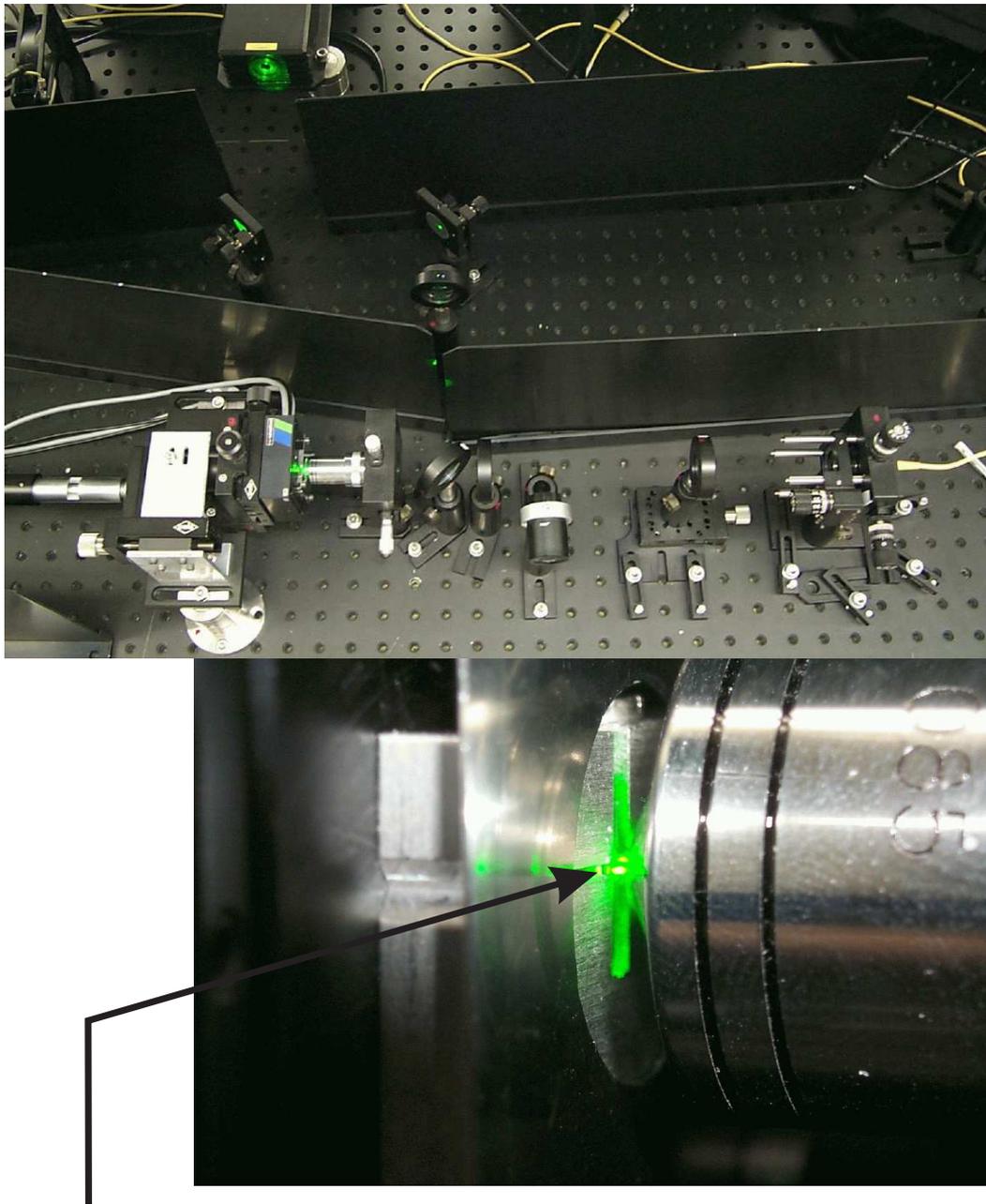
- Nachkorrektur der Position des Faserkopplers 1 aufgrund des berechneten Strahlteilerversatzes in x-Richtung
- Einsetzen des Rotfilters senkrecht zur optischen Achse 1
- Einbau der Linse 1, L_1 , (die sich auf einem z-Verschiebetisch befindet) und Ausrichtung an der optischen Achse 1, bis der rote Strahl zentriert durch die Linse geht und mittig auf das Objektiv trifft, der Rückreflex auf dem Faserkoppler 1 landet und der Brennpunkt an der berechneten Stelle sitzt

Um den Überlapp der beiden Strahltaillen¹⁰ zu überprüfen, wurde ein Hilfsmikroskop, bestehend aus O_2 und L_3 , hinter dem Piezotisch eingesetzt, wie schon in Abb. 3.12 skizziert. Dafür sind noch folgende Justierschritte nötig:

- Ausrichten des Justierlasers 2, JL_2 , an der optischen Achse 1
- Einsetzen der Achromatlinse und Einstellung durch beide Justierlaser, sodass der durchgehende Strahl des ersten Justierlasers in x-y-z-Richtung ausgerichtet ist und der Rückreflex des zweiten Justierlasers wieder exakt auf ihn zurücktrifft
- Einbau des zweiten Objektivs, O_2 , 5 mm vom Brennpunkt der Achromatlinse entfernt und erneut x-y-z-Test durch den ersten Justierlaser und Rückreflextest durch den zweiten
- Aufstellen eines Schirms in der Bildebene des zweiten Objektivs und anschließender Versuch, die Bilder des roten Justierlasers 1 und des grünen Anregungslasers zu überlagern, indem man zunächst den Strahlteiler entsprechend verdreht und für die Feineinstellung die beiden Spiegel, S_1 und S_2 , kippt
- Nochmalige Kontrolle, ob roter und grüner Strahl mittig auf das erste Objektiv treffen, evtl. Nachkorrektur

Um die Waists nun auch in z-Richtung zu überlagern, empfiehlt es sich, eine N/V-Stelle im Diamant zu suchen und durch Veränderung der z-Position der Linse 1 ein Maximum an Helligkeit des Fluoreszenzlichts einzustellen.

¹⁰Damit ist die Strahltaile des roten Justier- und die des grünen Anregungslasers gemeint.



eingeklemmter
Diamant

Abbildung 3.13: Fotos des Aufbaus; oben: gesamtes konfokales Mikroskop; unten: Diamant und Objektiv vergrößert

3.2 Aufnahmen mit dem konfokalen Mikroskop

Die genaue Positionierung des Anregungsstrahls auf ein N/V-Zentrum ist von entscheidender Bedeutung, um einen möglichst hohen Prozentsatz seines Fluoreszenzlichts aufzusammeln. Eine besondere Bedeutung kommt dabei der im nächsten Abschnitt behandelten Bestimmung der Tiefe des Anregungsfokus im Diamant zu. Da es auf der Oberfläche der Diamantprobe aufgrund von Verunreinigungen (z.B. durch Staub, s. Abb. 3.15) zu einer erheblichen Vergrößerung des Hintergrundsignals kommt, liegt eine N/V-Stelle in der - auf die z-Achse bezogenen - Mitte des Diamanten am günstigsten für ein Einzel-Photonen-Experiment.

Im darauffolgenden Abschnitt wird kurz auf die erwartungsgemäß auflösungsbedingte „Größe“ der Zentren und deren Dichte in den untersuchten Proben eingegangen. Anschließend findet noch die Leistungsabhängigkeit der Zählrate sowohl auf dem Zentrum als auch des Untergrunds Erwähnung.

3.2.1 Auffinden einzelner Fehlstellen

Zu Beginn dieses Abschnitts sei zunächst bemerkt, dass sich die Tiefe des jeweiligen aktuellen Bildes in der Diamantprobe ermitteln läßt.

Für eine grobe Einschätzung der Tiefe ist der Rückreflex des grünen Anregungslichts am Diamant gut geeignet, der an der Laseraustrittsschulter sichtbar wird. Bei der Bewegung des Diamants in z-Richtung erkennt man nämlich durch diesen Rückreflex die beiden Oberflächen¹¹ der Diamantprobe. Im Moment des Durchgangs einer Oberfläche durch die Objektebene des Mikroskops ziehen sich die Beugungsringe des rückreflektierten Lichts an der Laservorderfläche zusammen, um sich anschließend wieder auszuweiten, da genau in diesem Moment der Fokus des Laserlichts auf der reflektierenden Oberfläche sitzt.

Eine etwas genauere Bestimmung der Tiefe in der Probe ermöglicht das bei einer Verschiebung in Strahlrichtung aufgenommene Fluoreszenzlicht des Diamants (s. Abb. 3.14). An den Oberflächen des Diamants beobachtet man starke Fluoreszenz. Offensichtlich tragen dort die Fluoreszenz von Verunreinigungen der Diamantoberfläche, z.B. von Staub, und der erhöhte Rückreflex des Anregungslichts zum aufgesammelten Licht bei. Da die z-Verschiebung nicht nur von Hand, sondern auch über einen computergesteuerten Motor möglich ist, kann nun die gewünschte Position im Diamant genau angesteuert werden.

¹¹Das bezieht sich auf die „vordere“ und die „hintere“ Oberfläche des Diamants.

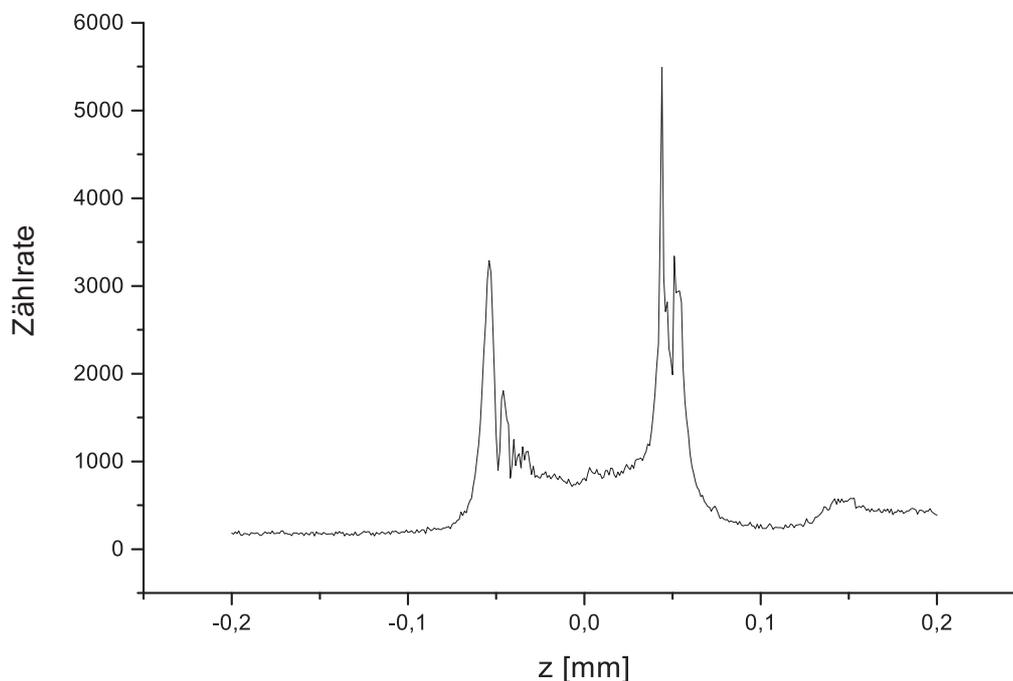


Abbildung 3.14: Fluoreszenzlicht als Funktion der Fokustiefe des anregenden Lasers im Diamant; an den Oberflächen des Diamants beobachtet man starke Fluoreszenz

Bei den ersten Messungen handelt es sich um Oberflächenbilder, auf denen einige der oben erwähnten Verunreinigungen erkennbar sind (s. Abb. 3.15).

Anschließend im Inneren des Diamants durchgeführte Aufnahmen zeigen deutlich den Unterschied zwischen den dortigen „Leuchtpunkten“ und denen der Oberfläche. Die im Inneren beobachteten „Lichtquellen“ sind bei weitem symmetrischer, viel kleiner und lichtschwächer (s. Abb. 3.16). Außerdem bleibt ihre Position im Gegensatz zu der Position der „Oberflächenpunkte“ auch nach mehreren Messungen im Wesentlichen invariant. Dass es sich dabei tatsächlich um die gesuchten N/V-Zentren handelt, wird einerseits durch ihre auflösungsbedingte Größe (s. Abschnitt 3.2.2), vor allem aber durch ihr charakteristisches Fluoreszenzspektrum (s. Abschnitt 3.3) bestätigt.

Um möglichst viel Intensität des N/V-Zentrums aufzusammeln, ist eine genaue Einstellung des Fokus in allen drei Richtungen vonnöten:

- Positionierung des Fokus des Anregungslasers im Inneren des Diamants
- Großflächiger x-y-Scan mit größerer Schrittweite zur Auswahl eines N/V-Defekts

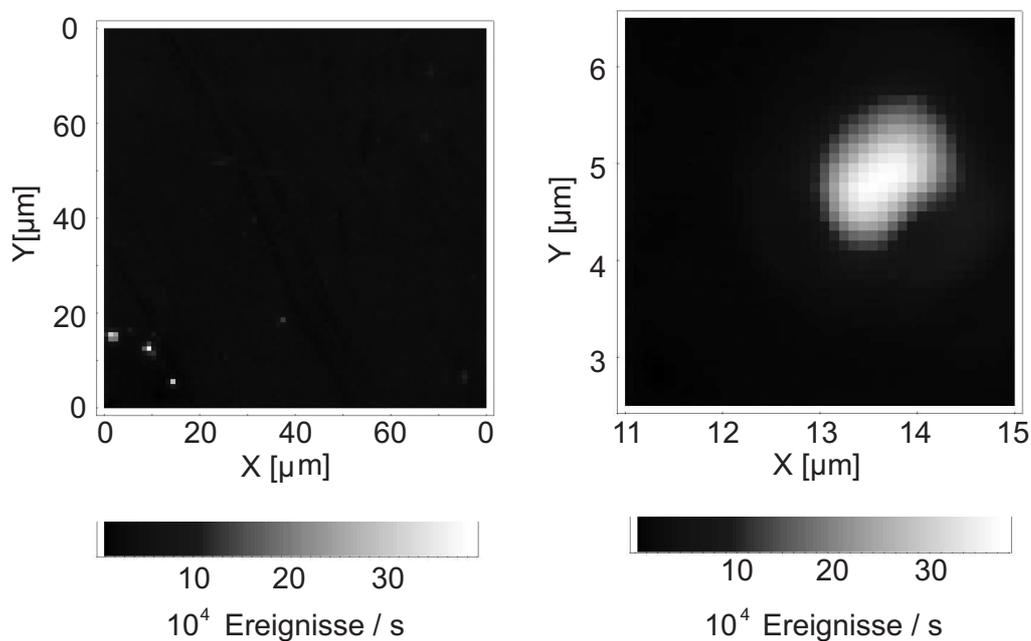


Abbildung 3.15: x-y-Scan auf der Oberfläche des Diamanten Nr. 6; Leistung des Anregungslasers: 10 mW; rechts: genauere Scan eines Ausschnitts des linken Bildes

- x-y-Scan mit geringerer Schrittweite in der näheren Umgebung dieses Defekts
- Positionierung des Anregungsfokus auf das Fluoreszenzmaximum des x-y-Scans
- Optimierung der z-Position des Diamanten auf das Fluoreszenzmaximum
- Wiederholung der letzten vier Schritte, bis keine Erhöhung der maximalen Fluoreszenz mehr erfolgt

3.2.2 „Größe“ und Dichte der Fehlstellen

Nachdem bereits beschrieben wurde, wie ein N/V-Zentrum zu finden ist, soll nun auf gewisse Eigenschaften der Zentren, wie Größe und Dichte eingegangen werden.

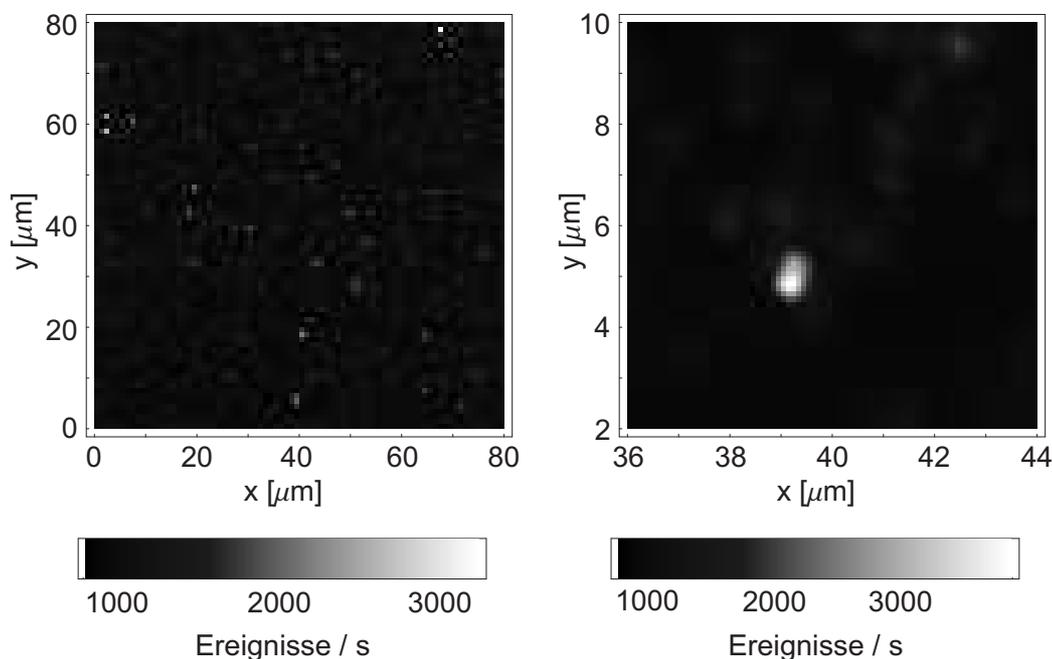


Abbildung 3.16: x-y-Scan im Inneren des Diamanten Nr. 6 bei 10 mW Anregungsleistung, die einzelnen N/V-Zentren sind als helle Punkte erkennbar; rechts: genauere Scan eines Ausschnitts des linken Bildes mit einer einzelnen N/V-Stelle in der Brennebene

Alle bisher beobachteten Fehlstellen hatten vergleichbare Größen, d.h. eine vergleichbare Halbwertsbreite der Intensität. Typischerweise liegen deren Werte zwischen 400 und 550 nm (s. Abb. 3.17), was sehr gut mit der lateralen Auflösung des Mikroskops¹² übereinstimmt.

Da es Ziel dieses Experiments ist, einzelne Fehlstellen anzuregen, ist die Dichte der vorhandenen N/V-Zentren ebenfalls von großer Bedeutung. Dabei sollte die Dichte einerseits nicht zu groß sein, um kein Fluoreszenzlicht von benachbarten Fehlstellen aufzusammeln, andererseits sollte sie aber auch nicht zu gering sein, um das Auffinden eines N/V-Zentrums nicht unnötig zu erschweren. Es erwies sich dabei als günstig, die unbehandelten¹³ Diamanten zu verwenden, da es keinerlei Schwierigkeiten bereitete, dort N/V-Zentren zu

¹²Dabei muss man den etwas vom berechneten abweichenden, tatsächlichen Aufbau berücksichtigen.

¹³D.h. es findet kein n- oder e-Beschuss mit anschließendem Erhitzen statt, um die Dichte der N/V-Zentren zu erhöhen.

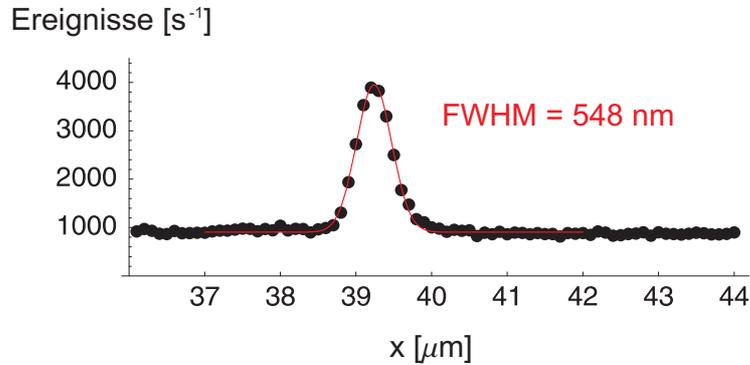


Abbildung 3.17: Transversale Intensitätsabbildung des Fluoreszenzmaximums eines N/V-Zentrums; Anregung mit 10 mW Laserleistung; ermittelte Halbwertsbreite der Intensität (FWHM): 548 nm

finden. Meist war bereits im ersten $40 \mu\text{m} \times 40 \mu\text{m}$ - Bild mindestens eine vorhanden.

Deshalb wurde die Dichte der N/V-Zentren nur für einen unbehandelten Diamanten festgestellt. Um dies zu erreichen, wurde eine x-y-z-Scan im Volumen von $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$ durchgeführt und die Zahl der darin befindlichen Fehlstellen ermittelt. Da es sich bei den meisten dieser Fehlstellen um N/V-Zentren handeln dürfte¹⁴, errechnet sich deren Dichte als Quotient der Anzahl und des Volumens zu 5×10^9 pro cm^3 .

3.2.3 Leistungsabhängige Sättigung der Fluoreszenz

Da die N/V-Zentren mit einem sog. Drei-Niveau-System beschrieben werden können (s. Abschnitt 2.3), ist mit steigender Leistung eine Sättigung der Intensität des Fluoreszenzlichts eines N/V-Defekts zu erwarten. Denn bei ständig zunehmender Anregungsleistung wird irgendwann der Punkt erreicht, an dem der zerfallene Zustand sofort wieder angeregt wird. Ab diesem Punkt kommt es also zu keiner anregungsbedingten Verzögerung mehr; stattdessen ist die Zerfallsrate nur noch durch die Übergangsrate des Drei-Niveau-Systems selbst vorgegeben. Dann kann offensichtlich auch eine weite-

¹⁴Dies ist aus dem Spektrumsvergleich vieler verschiedener Fehlstellen ersichtlich.

re Erhöhung der Anregungsleistung keine Steigerung der Anzahl der Zerfälle mehr bewirken.

Ganz anders verhält es sich mit dem Hintergrundlicht, das vermutlich hauptsächlich von Ramanstreuung des Anregungslasers am Diamantgitter herrührt (s. Abschnitt 3.3.3). Weil der dabei stattfindende Phononenstreuungsprozess keine nennenswerte Zeit benötigt, und in der Umgebung des Anregungslichts auch mehr als eine Elementarzelle des Diamanten dazu beiträgt, ist hier mit keiner Sättigung zu rechnen. Stattdessen müsste das Hintergrundlicht linear mit der Anregungsleistung zunehmen.

Beide Erwartungen bzgl. der Sättigung wurden durch ein Experiment bestätigt, bei dem zu verschiedenen Laserleistungen sowohl das Maximum der Fluoreszenz eines Zentrums, als auch der über einen gewissen Bereich gemittelte Hintergrund gemessen wurde (s. Abb. 3.18). Dabei wurde die Hintergrundzählrate r_H in Abhängigkeit von der Anregungsleistung P linear gefittet nach der Formel:

$$r_H = \alpha \cdot P \quad (3.26)$$

Die Sättigung der Zählrate $r_{N/V}$, die direkt auf einem N/V-Zentrum ermittelt wurde, wurde dabei folgendermaßen modelliert:

$$r_{N/V} = r_0 \cdot \frac{P}{P + P_{sat}} + r_H, \quad (3.27)$$

wobei r_0 und P_{sat} Konstanten sind, und der Hintergrund r_H als additiv angenommen wird. Dabei stellt r_0 die maximal vom N/V-Zentrum zu erwartende Zählrate dar (für $P \rightarrow \infty$) und P_{sat} diejenige Leistung, bei der die halbe maximale Zählrate erreicht wird.

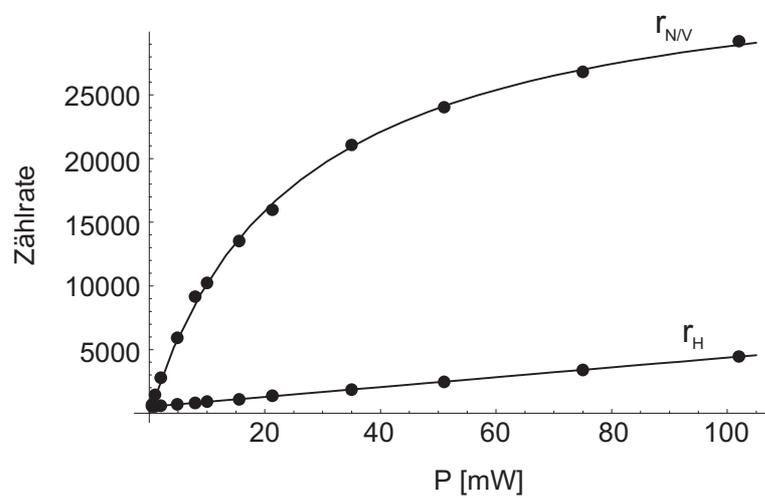


Abbildung 3.18: Zählrate des Detektors aufgetragen gegen die Anregungsleistung; obere Kurve: auf dem N/V-Zentrum, untere Kurve: Hintergrund; durchgezogene Linien: Fits gemäß Gleichungen (3.27) und (3.26)

3.3 Spektrum des N/V-Zentrums

Bis zu diesem Punkt ist es also mit dem aufgebauten Mikroskop gelungen, einzelne auflösungsbedingte Defekte zu finden und exakt anzuregen. Dass es sich bei den in den vorigen Abschnitten untersuchten Defekten jedoch tatsächlich um N/V-Zentren handelt, wurde stillschweigend vorausgesetzt. Aufgrund der berichteten Häufigkeit von N/V-Zentren in dem untersuchten Typ-Ib-Diamant, ist das zwar eine naheliegende Vermutung, die jedoch trotzdem noch durch ein Spektrum eines solchen Defekts bewiesen werden muss.

Dazu wurde nun ein Spektrometer aufgebaut und mit Hilfe eines HeNe-Lasers justiert, was in den folgenden beiden Abschnitten erläutert wird. Im anschließenden Teil wird das aufgenommene Spektrum eines N/V-Zentrums einem der wenigen andersartigen Spektren von Defekten gegenübergestellt.

3.3.1 Aufbau des Spektrometers

An sich gibt es verschiedene Möglichkeiten, Spektrometer für die unterschiedlichsten Anwendungen zu realisieren (verschiedene Gitterspektrometer, Prismenspektrometer, evtl. auch Michelson-Interferometer, [18]). In diesem Experiment wurde ein einfaches Gitterspektrometer mit einem Stufengitter benutzt.

Jede Art von Spektrometer ist so konstruiert, dass ein Weglängenunterschied innerhalb eines von einer Lichtquelle ausgesandten Lichtstrahls existiert. Dieser führt dann, falls er innerhalb der Kohärenzlänge des zu untersuchenden Lichts liegt, zu Interferenzmustern. Die Bedingung für das Auftreten eines Maximums, die sogenannte Interferenzbedingung für konstruktive Interferenz, lautet, dass der Weglängenunterschied ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge betragen muss [18].

Um bei dem hier verwendeten Stufengitter die Abhängigkeit der konstruktiv interferierenden Wellenlänge von der Winkelstellung des Gitters zu berechnen, ist es zunächst nötig, sich die Weglängendifferenz zweier Strahlen an einem Stufengitter bewusst zu machen.

Dafür müssen, wie aus Abb. 3.19 ersichtlich, zwei verschiedene Weglängenunterschiede berücksichtigt werden. Dabei legt der Strahl auf dem Weg B schon vor und auf dem Weg A nach dem Gitter eine längere Strecke zurück. Aus einfachen Dreiecksbeziehungen läßt sich erkennen, dass die beiden Wegunterschiede durch $g \sin \varphi$ bzw. $g \sin(\alpha - \varphi)$ gegeben sind. Damit nun konstruktive Interferenz möglich ist, also ein Maximum an Helligkeit entsteht, muss diese Weglängendifferenz ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge λ betragen.

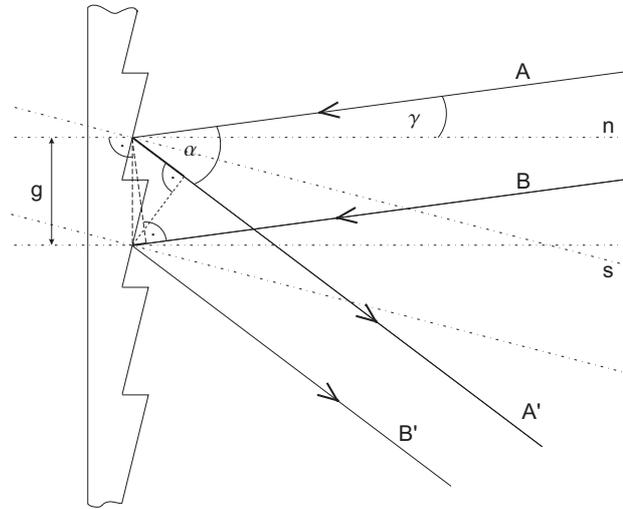


Abbildung 3.19: Strahlverlauf an einem Stufengitter; A, B: einfallender Strahl, A', B': reflektierter Strahl, g: Gitterkonstante, n: Gitternormale, s: Stufennormale

D.h. die Interferenzbedingung für das m-te Maximum lautet:

$$m\lambda = g(\sin \varphi - \sin(\alpha - \varphi)) \quad (3.28)$$

Die einzelnen Stufen des hier verwendeten Gitters sind stark asymmetrisch (s. Abb. 3.19), sodass das meiste Licht in eine Richtung reflektiert wird (im Bild entspricht das der Richtung nach schräg unten). Weil dabei der größte Lichtanteil (ca. 40 %) in einem der beiden Maxima erster Ordnung liegt, wird dieses erste Maximum auch im späteren Spektrometernaufbau verwendet. Dies führt dann zu folgender Beziehung zwischen konstruktiv interferierender Wellenlänge und Gitterwinkel:

$$\lambda = g(\sin \varphi - \sin(\alpha - \varphi)) \quad (3.29)$$

Um möglichst viel Licht nach dem Spektrometer aufzusammeln, wurde im tatsächlichen Aufbau ein erneutes Einkoppeln über einen Faserkoppler am Spektrometernaufbau vermieden. Ein Faserkoppler koppelt nämlich aufgrund seiner vorgegebenen numerischen Apertur nur einen bestimmten Winkelbereich des Lichts ein. Wesentlich flexibler in der Winkelakzeptanz ist dagegen eine einfache Linse, die den reflektierten Strahl direkt auf den Detektor abbildet (s. Abb. 3.20).

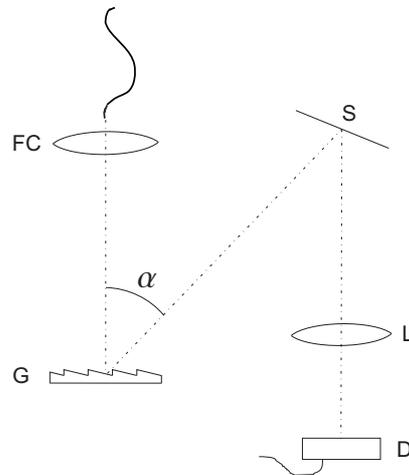


Abbildung 3.20: Aufbau des Spektrometers; FC: Faserkoppler, G: Gitter, S: Spiegel, L: Linse mit Brennweite 250 mm, D: Detektor

Für die Auswertung der später gemessenen Spektren ist das Auflösungsvermögen des verwendeten Spektrometers von nicht unerheblichem Interesse. Theoretisch definiert sich die maximale spektrale Auflösung eines Gitters bezüglich der ersten Ordnung folgendermaßen [18], S.510:

$$A \equiv \frac{\lambda}{\Delta\lambda_{min}} = N, \quad (3.30)$$

wobei N die ausgeleuchtete Anzahl der Gitterlinien und $\Delta\lambda_{min}$ den minimalen Wellenlängenunterschied zweier Komponenten darstellt, die aufgrund des Rayleigh-Kriteriums noch voneinander getrennt werden können. Bei diesem Experiment wurde der Aufbau so gewählt, dass von ca. 1200 beleuchteten Gitterlinien ausgegangen werden kann.

Diese maximale Auflösung des Spektrometers wird jedoch in diesem Fall nicht erreicht. Aufgrund der endlichen Detektorausdehnung wird nämlich ein gewisser Winkelbereich des austretenden Lichts und nicht ein exakt definierter Winkel aufgesammelt. Eine Abschätzung der Genauigkeit durch die Linienbreite eines HeNe-Lasers erfolgt im nächsten Abschnitt.

3.3.2 Justage des Spektrometers

Das Spektrometer wird mit Hilfe eines HeNe-Lasers mit Wellenlänge 633 nm justiert. Zunächst wird dabei das Gitter so ausgerichtet, dass sein Rückreflex

genau auf den Faserauskoppler zurücktrifft. Anschließend bestimmt der Winkel des ersten Maximums des HeNe-Lasers die Position des Spiegels. Nach Formel (3.29) beträgt dieser Winkel $49,4^\circ$, da φ in diesem Fall ja 0° ist, und die Gitterkonstante $\frac{1}{1200}$ mm beträgt. In Abb. 3.21 ist das Spektrum dieses ersten Maximums des HeNe-Lasers dargestellt; die Gitterverkipfung von 0° entspricht dabei der Justage-Einstellung.

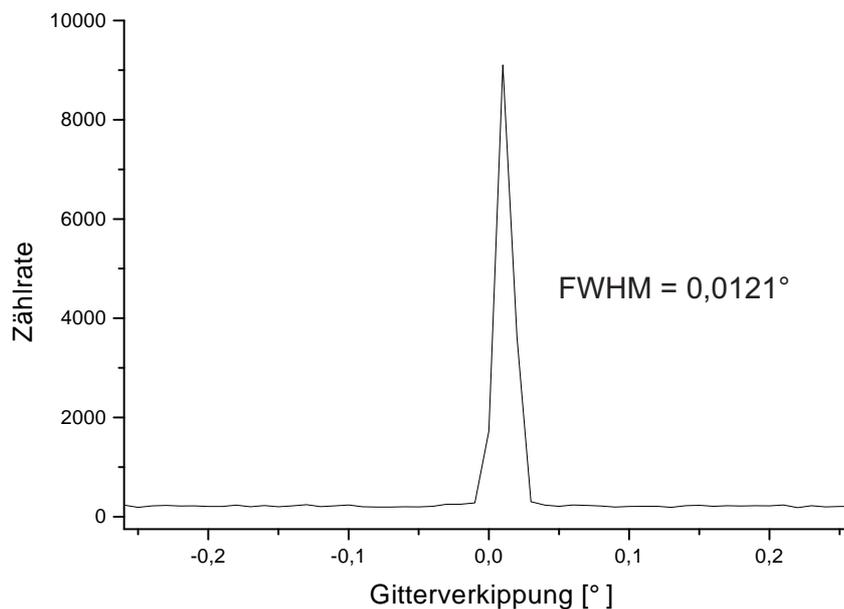


Abbildung 3.21: Spektrum des HeNe-Lasers; Zählrate angetragen gegen Gitterwinkel bzgl. Justage-Einstellung; ermittelte Halbwertsbreite der Intensität (FWHM): $0,0121^\circ$

Anhand der dort ermittelten Halbwertsbreite der Zählrate von $0,0121^\circ$, und mit der Annahme einer spektral sehr schmalen HeNe-Laserlinie lässt sich die Auflösung des Spektrometers mit den Gleichungen (3.29) und (3.30) auf $A \approx 1000$ schätzen, d.h. $\Delta\lambda_{min} \approx 0,6$ nm.

Zur späteren Umrechnung von Gitterverkipfung φ in konstruktiv interferierende Wellenlänge benötigt man die Überlegung, dass der Winkel zwischen ein- und ausfallendem Strahl, α , durch die Spiegelposition auf $49,4^\circ$ festgelegt ist. Dann ergibt sich die erforderliche Umrechnung aus Gleichung (3.29), wie in Abb. 3.22 dargestellt.

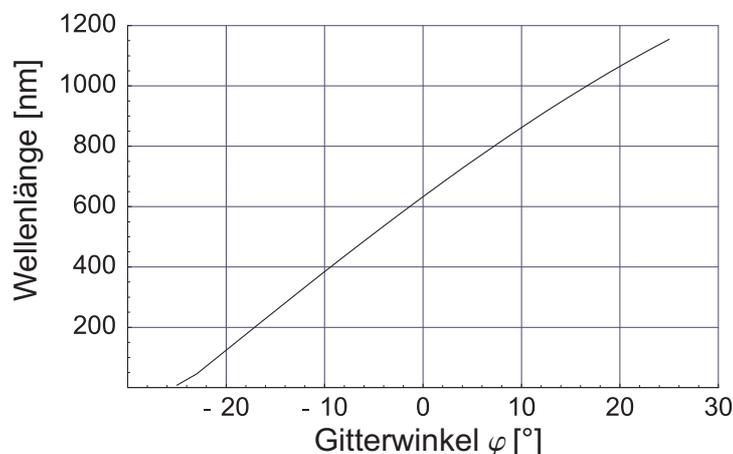


Abbildung 3.22: Umrechnung von Gitterwinkel φ in Wellenlänge des konstruktiv interferierenden Lichts

3.3.3 Gemessene Spektren der N/V-Zentren

Die meisten aufgenommenen Spektren stimmen, abzüglich des Hintergrundlichts, gut mit den von Dräbenstedt in [13] berichteten Spektren von N/V-Zentren überein. Dies bestätigt die Annahme aus Abschnitt 3.2.2, dass es sich bei den meisten der im Diamant gefundenen Defekte um die gesuchten N/V-Zentren handelt.

In Abb. 3.23 ist nicht nur das Spektrum eingezeichnet, das direkt auf einem N/V-Zentrum beobachtet wird, sondern auch das auf einer etwas vom Zentrum entfernten Position, aber noch im Diamant gemessene Spektrum. Die beiden Hintergrundpeaks bei 570 bzw. 615 nm lassen sich mit Ein- bzw. Zwei-Phononen-Streuung am Diamantgitter erklären (s. S. 10). Dabei ist die Linie der Ein-Phononen-Streuung durch den im Mikroskop verwendeten RG 590-Filter stark gedämpft. Im eigentlichen Spektrum des Zentrums taucht die ZPL (Zero Phonon Line) in guter Übereinstimmung mit der Literatur ([8], [9], [24]) bei ca. 638 nm auf. Die Verbreiterung des Spektrums zu höheren Wellenlängen hin geschieht durch Phononenbeiträge beim Zerfall des angeregten Zustands (s. Abb. 2.4).

Einige wenige „Leuchtpunkte“ fallen jedoch nicht nur in Bezug auf ihr Spektrum vollkommen aus der Reihe. Sie besitzen eine bis zu dreimal so hohe Leuchtkraft, in ihrem Spektrum einen schmalen (!) Peak bei ca. 694 nm (s. Abb. 3.24) und keinerlei Einbruch im Hanbury-Brown-Twiss-Experiment,

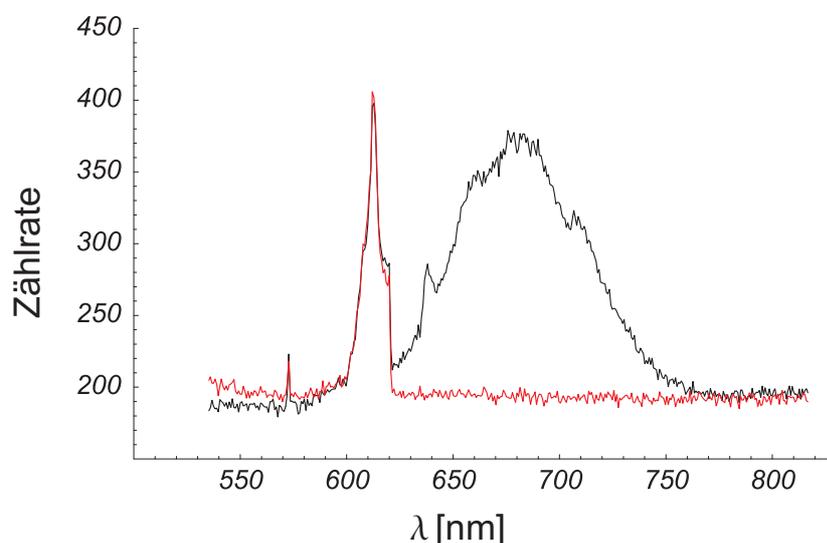


Abbildung 3.23: Spektrum eines N/V-Zentrums; schwarze Linie: direkt auf dem Zentrum, graue Linie: etwas daneben, aber noch im Diamant

was auf klassisches Licht ohne Einzel-Photonencharakter hindeutet¹⁵. Trotzdem ist auch die Größe dieser Defekte durch die Mikroskopauflösung gegeben, was auf eine kaum über die atomaren Größenverhältnisse hinausgehende Besonderheit an diesen Stellen schließen läßt. Außerdem bleiben auch diese Fluoreszenz-Zentren über einen Zeitraum von Stunden, ja sogar Tagen, konstant an einer Stelle.

Bis jetzt konnte noch nicht ermittelt werden, um was es sich bei diesen Defekten handelt, da auch einschlägige Bücher solche Charakteristika nicht erwähnen [5], [6]. Das Seltsamste an diesen Stellen ist jedoch ihr gering verbreitetes Spektrum. Denn wenn man davon ausgeht, dass irgendein elektrischer Übergang dort dieses Spektrum erzeugt, müsste sich bei Zimmertemperatur auf jeden Fall eine deutliche Phononenverbreiterung zeigen. Hier besteht also noch erheblicher Klärungsbedarf.

¹⁵Eine Beschreibung dieses Hanbury-Brown-Twiss-Experiments und seiner physikalischen Bedeutung folgt in Abschnitt 3.4.1.

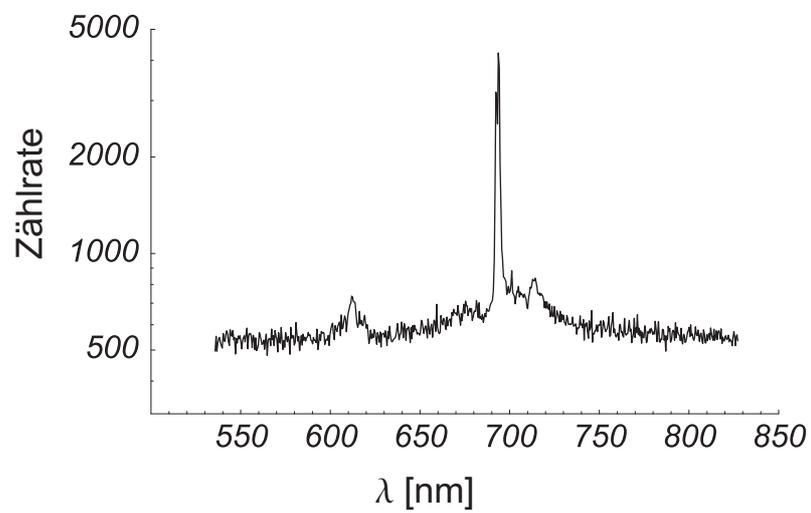


Abbildung 3.24: Spektrum eines noch nicht identifizierten Defekts; die Zählrate ist auf einer logarithmischen Skala dargestellt; der Ramanpeak bei 615 nm ist trotzdem nur noch schwach erkennbar

3.4 Einzel-Photonen-Nachweis durch ein Hanbury-Brown-Twiss-Experiment

Um den Nachweis zu führen, dass es sich bei einer beliebigen Lichtquelle um eine Einzel-Photonen-Quelle handelt, genügt es, die „Nicht-Gleichzeitigkeit“ ihrer Photonen zu zeigen. Das heißt, dass niemals zwei Photonen absolut gleichzeitig gemessen werden dürfen.

Man führt dabei eine sogenannte Paarkorrelationsfunktion $g^{(2)}(\Delta t)$ ein, die die zur unabhängigen Emission relative Wahrscheinlichkeit beschreibt, zum Zeitpunkt $t + \Delta t$ ein Photon zu detektieren, wenn zum Zeitpunkt t eines detektiert wurde. Dabei wird diese Größe folgendermaßen definiert:

$$g^{(2)}(\Delta t) = \frac{\langle I(t)I(t + \Delta t) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}, \quad (3.31)$$

wobei I die Intensität und die eckigen Klammern den Mittelwert bezeichnen. Für klassisches, d.h. poissonverteiltes Licht erwartet man, dass die Intensität zu einem Zeitpunkt t im Mittel genauso groß ist, wie eine kurze Zeit Δt später. Das heißt, $g^{(2)}_{klass}(\Delta t) = 1$.

Falls die Intensität einer Lichtquelle zum Zeitpunkt $t + \Delta t$ jedoch größer ist, als die zum Zeitpunkt t , falls es also nach einer gewissen Zeit wahrscheinlicher ist, dass ein Photon ausgesandt wird, wird $g^{(2)}(\Delta t)$ größer als 1. Analog bedeutet $g^{(2)}(\Delta t)$ kleiner als 1 eine verringerte Wahrscheinlichkeit für die Aussendung eines Photons.

Für eine perfekte Einzel-Photonen-Quelle erwartet man also für $\Delta t \rightarrow 0$ eine Abnahme von $g^{(2)}$ bis auf 0. Da jedoch in jedem experimentellen Aufbau eine gewisse Hintergrund-Photonen-Zählrate auftritt, stellt die gemessene Kurve für $g^{(2)}$ eine Mischung aus den Werten für die Einzel-Photonen-Quelle und für den Hintergrund dar.

Im Folgenden wird zunächst der Aufbau des hier verwendeten Hanbury-Brown-Twiss-Experiments erläutert. Anschließend wird auf bei der Messung auftretende Probleme durch gegenseitige Beeinflussung der beiden Detektoren näher eingegangen, und wie sie in diesem Experiment verhindert wurden. Dadurch erhält man die am Ende dargestellten verbesserten $g^{(2)}$ -Messungen des N/V-Zentrums.

3.4.1 Aufbau des Hanbury-Brown-Twiss-Experiments (HBT)

Um den Einzel-Photonen-Charakter eines N/V-Zentrums zu testen, muss $g^{(2)}$ für $\Delta t \rightarrow 0$ gemessen werden. Aufgrund einer gewissen Totzeit einer Photo-

diode (s. S. 21) ist es nicht möglich, diese Messung mit nur einem Detektor durchzuführen. Stattdessen wird der von der Lichtquelle kommende Strahl über einen Strahlteiler auf zwei Detektoren aufgeteilt (HBT-Aufbau, [19]). Mit einem derartigen Aufbau können nun mehrere gleichzeitig oder nahezu gleichzeitig eintreffende Photonen registriert werden, sofern beide Detektoren über den Strahlteiler jeweils mindestens eines dieser beiden Photonen erhalten.

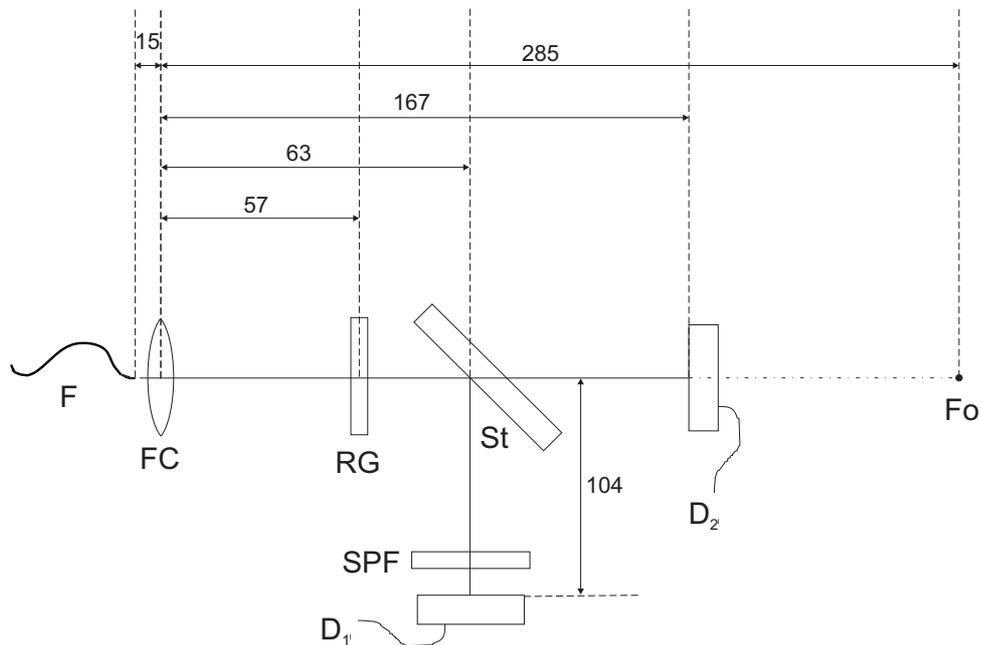


Abbildung 3.25: Aufbau des HBT; F: Faser, FC: Faserkoppler, RG: Rotfilter RG630, St: Strahlteiler, $D_{1/2}$: Detektoren, Fo: Fokus der Faserkopplerlinse, SPF: Short Pass Filter 750 (Einbau erst später, s. Abschnitt 3.4.2), alle Beschriftungen in mm

Im verwendeten Aufbau wirkt einer der beiden Detektoren als Trigger für den anderen, d.h. es werden nur solche Ereignisse gezählt, bei denen innerhalb eines bestimmten Zeitfensters¹⁶ beide Detektoren ein Photon „gesehen“ haben. Dadurch verringert sich die aufgezeichnete Datenmenge erheblich, ohne dabei Information zu verlieren, da im Prinzip nur die gleichzeitig ankommenden Photonen interessieren. Für die Auswertung werden die Ereignisse

¹⁶Das Zeitfenster beträgt in diesem Experiment typischerweise 100 ns.

gezählt, die in einem bestimmten zeitlichen Abstand voneinander aufgetreten sind, und in einem Histogramm dargestellt (s. Abb. 3.27). Alle diese Aufgaben übernimmt hierbei ein Speicheroszilloskop LC574A von LeCroy.

Zu guter Letzt muss nur noch ein kleines elektronisches Problem beseitigt werden. Da das Oszilloskop kleine Zeitdifferenzen im Bereich von 1 ns nicht messen kann, wird das Signal eines Detektors mit einem Kabel um ca. 60 ns verzögert. Damit liegt der erwartete Einbruch nun nicht mehr bei den problematischen 0 ns sondern bei 60 ns.

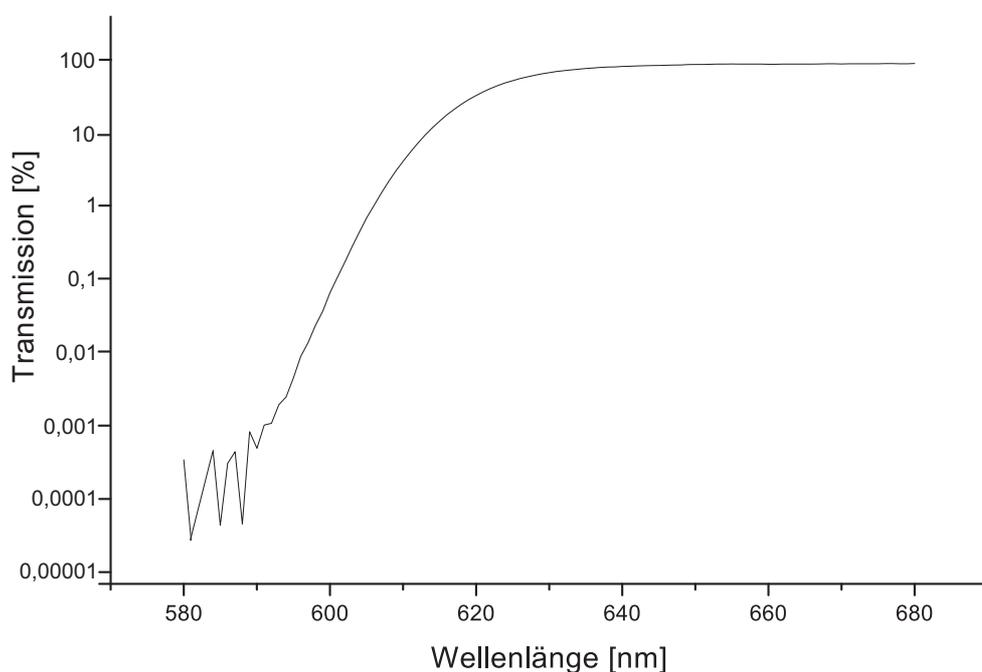


Abbildung 3.26: Logarithmisch angetragene Transmission des RG630 in Abhängigkeit von der Wellenlänge

Um die Effekte des Hintergrundlichts möglichst gering zu halten, wird ein Farbfilter vor den Faserauskoppler plaziert. Da der Großteil des Hintergrundlichts aus Ramanstreuung des Anregungslichts am Diamantgitter besteht, das hauptsächlich in einem Wellenlängenbereich unterhalb von 630 nm auftritt (s. Abschnitt 3.3.3), bietet sich hier ein Kantenfilter RG630 an, dessen Transmission in Abb. 3.26 dargestellt ist.

Die Ergebnisse der ersten Messung zeigten einen leichten, aber signifikanten Einbruch bei 60 ns von 18 % (s. Abb. 3.27). Da bei dieser Messung das Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis jedoch nur 1:1 betrug, war auch mit keinem höheren Einbruch als 25 % zu rechnen.

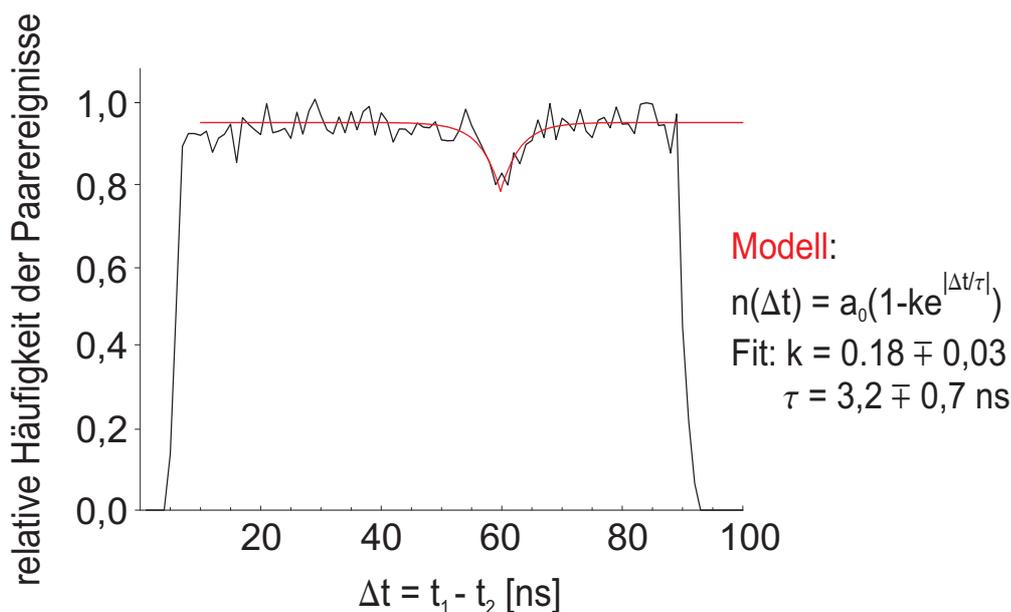


Abbildung 3.27: Erste HBT-Messung; Intensität des N/V-Zentrums : Hintergrund-Intensität: 1:1; dünne Linie: exponentieller Fit an die Messkurve

3.4.2 Auftretende Probleme bei den HBT-Aufnahmen

Nach einer Neujustage des Mikroskops verbesserte sich das Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis erheblich. Ohne Verwendung des Rotglasfilters betrug das Verhältnis 5:1, mit Rotglasfilter sogar 9:1.

Der erwartete Einbruch von rund 80 % im HBT-Diagramm trat jedoch keineswegs ein. Stattdessen kam es zu einem „Doppelhöcker“ im Bereich der Gleichzeitigkeit (also bei 60 ns; s. Abb. 3.28). Demzufolge ist, kurz nachdem ein Detektor ein Photon registriert hat, mit einer höheren Wahrscheinlichkeit mit einem „Klick“ des anderen Detektors zu rechnen. Eine Ursache für einen solchen Effekt kann eine Beeinflussung der beiden Detektoren sein.

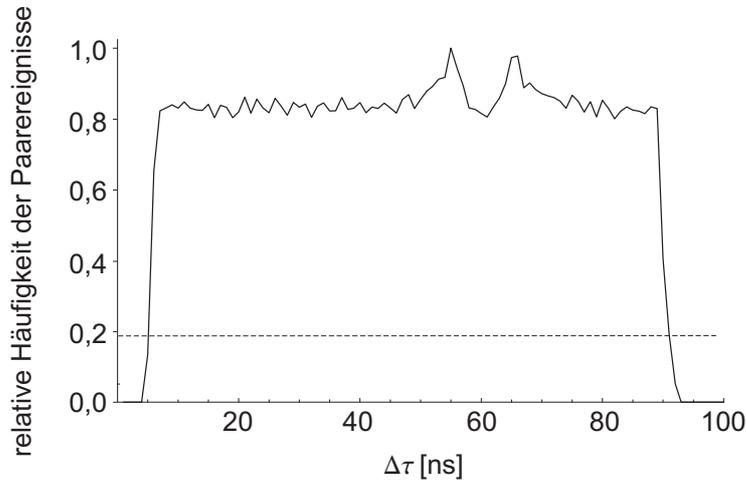


Abbildung 3.28: HBT-Messung bei 15 mW; Verhältnis Zentrum zu Hintergrund: 9:1; die erwartete Einbruchtiefe ist gestrichelt eingezeichnet

Die Tatsache, dass dieser Effekt bei der ersten Messung noch nicht aufgetreten ist, lässt sich mit der langen Zeit zwischen den beiden Messungen und einer damit verbundenen erneuten Justage des HBT-Aufbaus erklären.

Wie aber können sich die beiden Detektoren beeinflussen? Dies geschieht entweder auf elektronischem Wege, oder die Detektoren senden beim Detektieren von Photonen selbst Photonen aus, welche z.B. über das Faserende reflektiert werden und auf den anderen Detektor treffen. Die elektronische Beeinflussung erscheint aufgrund zweier völlig getrennter Nachweisschaltungen unwahrscheinlich, wohingegen eine Photonenemission von Photodioden bei der Detektion schon öfter beobachtet wurde. Trifft nämlich ein Photon auf die Avalanche-Diode, führt der hohe Entladungsstrom beim Durchbruch zu einer gewissen Rekombinations-Wahrscheinlichkeit von Elektronen und „Löchern“ im Si-Halbleiter. Dabei kann manchmal auch Licht ausgesandt werden¹⁷. Die Messungen zur Klärung dieser Frage werden im folgenden Abschnitt dargestellt.

¹⁷Bei Leuchtdioden, die z.B. aus GaAs bestehen, ist dies der (erwünschte) Normalfall.

3.4.3 Verhalten der Detektoren

Um die These zu überprüfen, dass die verwendeten Photodioden bei der Detektion selbst Licht aussenden, werden die beiden Detektoren¹⁸ über eine Linse aufeinander abgebildet (s. Abb. 3.29). Der Aufbau wird dabei so gut wie möglich abgedunkelt, so dass die von den Detektoren emittierten Photonen allein aufgrund deren Dunkelzählrate entstehen. Wegen der langen Totzeit der Dioden kann man sich überlegen, dass die vom Messdetektor aufgrund einer Messung emittierten Photonen den Leuchtdetektor nicht beeinflussen:

- Leuchtdetektor emittiert Photonen aufgrund eines Hintergrundereignisses
- Messdetektor detektiert eines dieser Photonen und emittiert deshalb ebenfalls Photonen
- Leuchtdetektor kann diese Photonen noch nicht detektieren, weil er sich noch in der Totzeit befindet

Umgekehrt beeinflussen auch die Photonen, die aufgrund der Dunkelzählrate des Messdetektors emittiert werden, anschließend die Zählrate des Messdetektors (mit dem Umweg über den Leuchtdetektor) nicht mehr. Bei den anschließenden Messungen werden außerdem nur Koinzidenzen (Paarereignisse) der beiden Detektoren gezählt, um die zufällig verteilte Dunkelzählrate des Messdetektors herauszufiltern.

Eine zusätzlich eingesetzte Blende ermöglicht es, den Raumwinkel genau zu berechnen, in dem Photonen des einen Detektors auf den anderen treffen. Dadurch ist es möglich, die absolute Anzahl der bei einer Detektion emittierten Photonen zu ermitteln.

Die Justage des Aufbaus erfolgt durch Maximieren der Rate, mit der das Oszilloskop Paarereignisse der beiden Detektoren registriert. Ist diese maximal, „sieht“ der Messdetektor alle Photonen, die der Leuchtdetektor in den durch die Blende bestimmten Raumwinkel aussendet. Dabei muss natürlich noch gewährleistet sein, dass in diesem Raumwinkelbereich durchschnittlich nicht mehr als ein Photon emittiert wird. Da das Ergebnis - wie man später feststellt - jedoch weit unter 1 liegt, ist diese Voraussetzung ebenfalls erfüllt.

Unter der Annahme, dass das Licht vom Leuchtdetektor in den gesamten Raumwinkel von 4π emittiert wird, ergibt sich der Anteil der vom Messdetektor „gesehenen“ Photonen als Verhältnis von der Blendenfläche zu der Oberfläche einer Kugel um D_1 mit Radius x . Mit N_{gez} als Anzahl der vom

¹⁸Der eine der beiden Detektoren wird dabei als „Leuchtdetektor“, der andere als „Messdetektor“ bezeichnet.

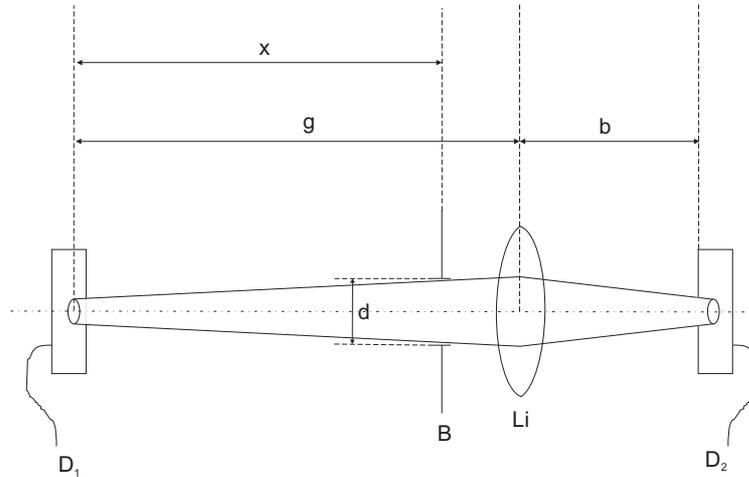


Abbildung 3.29: Abbildung einer Detektorfläche auf die andere; $D_{1/2}$: Leucht- bzw. Messdetektor mit Diode im Inneren (33 mm von der Schulter entfernt), B: Blende (bei einigen Messungen nicht eingebaut), Li: Linse mit Brennweite f ; $x = 123$ mm

Messdetektor gezählten Photonen und N_{emitt} als Anzahl der vom Leuchtdetektor emittierten Photonen, η_{Det} der Effizienz des Detektors und d bzw. x die Abmessungen aus Abb. 3.29 gilt also:

$$\frac{N_{gez}}{N_{emitt}} \cong \frac{\pi \left(\frac{d}{2}\right)^2}{4\pi x^2} = \frac{d^2}{16x^2} \cdot \eta_{Det} \quad (3.32)$$

Nachdem Messungen für verschiedene Blendendurchmesser gemacht wurden (s. Abb. 3.30), konnte die Anzahl der Photonen pro sterad (Raumwinkelbereich) und Ereignis im Leuchtdetektor ermittelt werden. Um dabei die Rate $R_{gez} = \frac{N_{gez}}{t}$ zu erhalten, wird der Anteil der Fläche unter einem Peak an der Gesamtfläche unter der Kurve durch das durchschnittliche Zeitintervall zwischen zwei Paarereignissen geteilt. Als $R_{emitt} = \frac{N_{emitt}}{t}$ wählt man, wie gesagt, die Dunkelzählrate des Leuchtdetektors. Eigentlich müsste von der Fläche unter dem Peak noch der Hintergrund, nämlich die zufällige Dunkelzählrate des Messdetektors, abgezogen werden, der aber offensichtlich vernachlässigbar klein ist (s. Abb. 3.30).

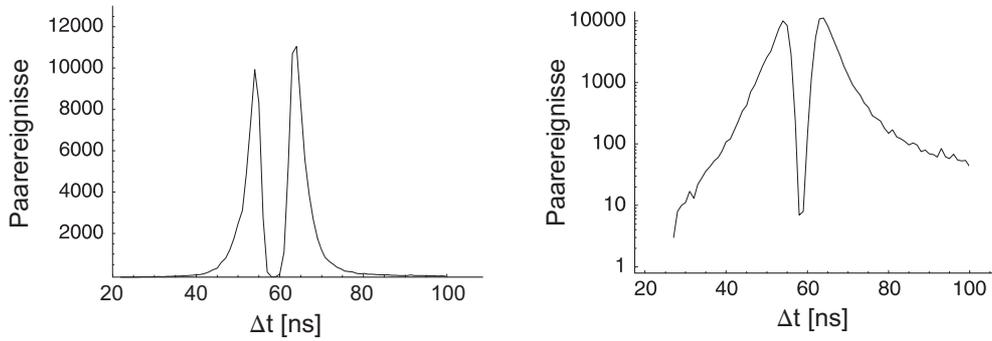


Abbildung 3.30: Messung der Zeitabhängigkeit der Paarereignisse bei aufeinander abgebildeten Dioden, rechts auf einer logarithmischen Skala; Blendendurchmesser $d=5$ mm

Die gesuchte Anzahl der emittierten Photonen pro sterad und Ereignis beträgt also (mit den gemessenen Werten):

$$\frac{N_{emitt}}{sr \cdot \text{Ereignis}} = \frac{R_{gez} 16x^2 \eta_{Det}}{R_{emitt} d^2} = \frac{7,32 \cdot 16 \cdot (123\text{mm})^2 \cdot 0,5}{200 \cdot (3\text{mm})^2 \cdot sr \cdot \text{Ereignis}} = \frac{40}{sr \cdot \text{Ereignis}} \quad (3.33)$$

Nachdem nun die Ursache der Beeinflussung des HBT-Experiments als „Leuchten“ der Detektoren bekannt ist, stellt sich die Frage, wie man dieses unterdrücken könnte. Da es nicht möglich ist, das Leuchten an sich zu verhindern, muss man dafür sorgen, dass der andere Detektor nichts mehr davon registriert. Einerseits bietet sich dafür eine leichte Dejustage des HBT-Aufbaus an, so dass die beiden Detektoren noch weniger im Fokus der Faserkopplerlinse liegen. Dadurch werden die von einem Detektor ausgesandten Photonen über die Reflexion am Faserkoppler nicht mehr direkt auf den anderen Detektor abgebildet. Andererseits könnte, vorausgesetzt das Spektrum der Dioden ist bekannt, ein entsprechendes Filter das unerwünschte Licht abblocken.

Bei der Vermessung des Spektrums des Diodendurchbruchs wird ein leicht abgewandelter Aufbau von Abb. 3.20 verwendet. Dabei ersetzt der Leuchtdetektor mit einer entsprechenden Linse den Faserkoppler als Leuchtquelle. Um die günstigsten Brennweiten der beiden zu benutzenden Linsen zu ermitteln, sind nun einige Berechnungen erforderlich.

Dabei ist die Wellenlängenauflösung des Spektrometers von entscheidender Bedeutung, wobei eine hohe Auflösung lange Messzeit und eine geringe Auflösung Informationsverlust bedeutet. Durch die Flächenausdehnung des Detektors wird die Auflösung noch verschlechtert, da dadurch Licht aus ver-

schiedenen Winkeln α auf das Gitter trifft. Nach Gleichung (3.29) ergibt sich die Wellenlängenauflösung des Spektrometers:

$$\frac{\partial\alpha}{\partial\lambda} = \frac{1}{g \cos(\alpha - \varphi)} \quad (3.34)$$

Für kleine Winkel φ erhält man also mit $g = \frac{1}{1200}$ mm und $\alpha = 49,4^\circ$:

$$\frac{\partial\alpha}{\partial\lambda} \approx \frac{\Delta\alpha}{\Delta\lambda} \approx 2 \frac{\text{mrad}}{\text{nm}} \quad (3.35)$$

Für die Winkelabweichung ergibt sich aufgrund der nicht zu vernachlässigenden Größe der Diodenfläche (Durchmesser: D , Brennweite der verwendeten Linse: f):

$$\Delta\alpha \approx \frac{D}{f} \quad (3.36)$$

Der vom Spektrometer aufgesammelte Raumwinkelbereich Ω berechnet sich folgendermaßen:

$$\Omega \approx \frac{\pi D^2}{4f^2} \quad (3.37)$$

Die sich daraus ergebende Zählrate¹⁹ n lautet:

$$n = \Omega \cdot \frac{N_{emitt}}{\text{sr} \cdot \text{Ereignis}} \cdot R_{emitt} \cdot \eta, \quad (3.38)$$

wobei η den Wirkungsgrad des Gitters (ca 40 %) bezeichnet.

Zur besseren Übersicht über die erhaltenen Ergebnisse in Abhängigkeit von der verwendeten Linse soll nun folgende Tabelle dienen:

f [mm]	$\Delta\alpha$ [mrad]	$\Delta\lambda$ [nm]	Ω [sr]	n [s ⁻¹]
50	10	5,4	0,196	3140
100	5	2,7	0,049	785
150	3,3	1,8	0,022	350
200	2,5	1,3	0,012	196
250	2	1,1	0,008	126

Aufgrund dieser Daten fiel die Entscheidung auf die Verwendung einer 150-mm-Linse. Eine damit durchgeführte Messung ist in Abb. 3.31 dargestellt. Dabei wurden nur Paare von Ereignissen der beiden Detektoren verwendet, um gegen die Dunkelzählrate des Messdetektors unempfindlich zu sein.

¹⁹Diese Zählrate ist jedoch auf das ganze Spektrum verteilt.

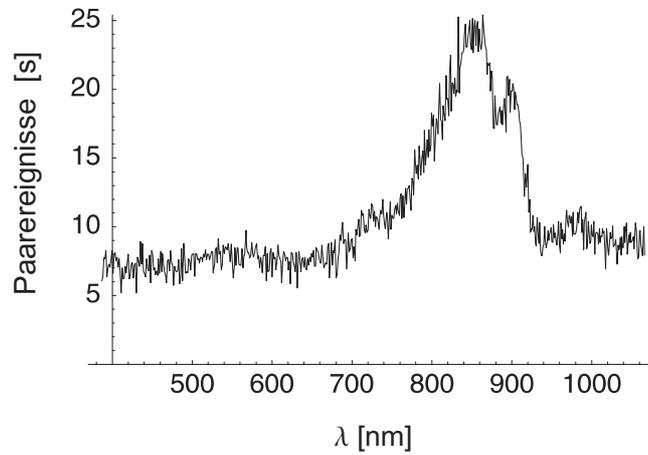


Abbildung 3.31: Spektrum der von einer Diode ausgesandten Photonen

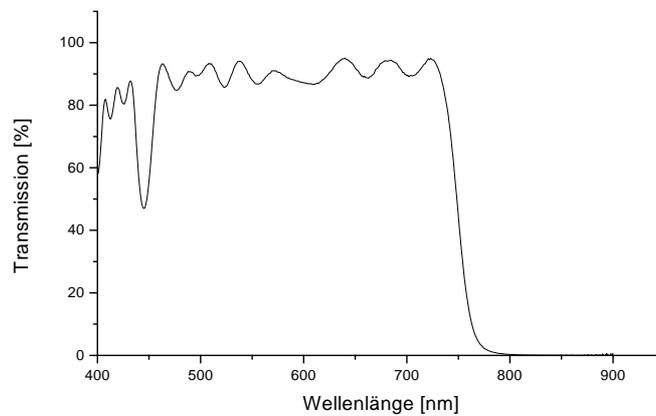


Abbildung 3.32: Transmission des eingesetzten „short pass filter 750N“ von Melles Griot in Abhängigkeit von der Wellenlänge

Da die von den Detektoren ausgesandten Photonen hauptsächlich in einem Wellenlängenbereich über 750 nm liegen, und überdies in diesem Bereich kaum Fluoreszenzlicht der N/V-Zentren auftritt (vgl. Abschnitt 3.3.3), bietet es sich an, ein passendes Kantenfilter zu verwenden (s. Abb. 3.32). Der

Einbau dieses Filters erfolgt direkt vor einem der beiden Detektoren.

Ein zusätzlich durch die Detektoren auftretendes Problem stellt deren Zeitungenauigkeit bei der Registrierung von Photonen dar. Um diese genauer zu bestimmen, kam eine „down-conversion“-Quelle zum Einsatz, die immer genau zwei Photonen gleichzeitig erzeugt [25]. Auf jeden der beiden Detektoren wird nun eines der beiden Photonen abgebildet. Nach einer Verzögerung eines Detektorsignals um 60 ns zeigt das Oszilloskop die Paarereignisse in Abhängigkeit vom Zeitunterschied an (s. Abb. 3.33). Die Halbwertsbreite der so entstehenden Kurve, also die Zeitungenauigkeit der beiden Detektoren zusammen, beträgt ca. 1,2 ns.

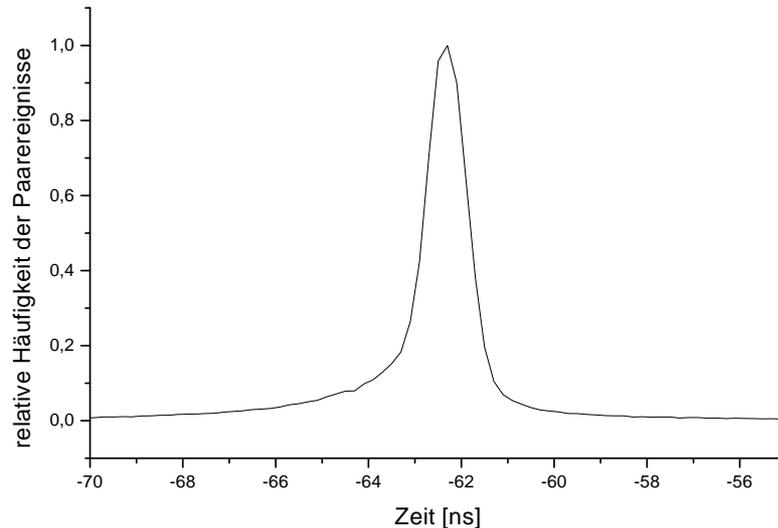


Abbildung 3.33: Messung der Zeitungenauigkeit der Detektoren mit genau gleichzeitig eintreffenden Photonen; ein Signal um ca. 60 ns verzögert; Zählrate der Detektoren bei ca. 70000 Ereignissen/s

3.4.4 Erneute HBT-Aufnahmen unter Berücksichtigung des Detektorenverhaltens

Nach dem Einbau des zusätzlichen Filters ist nun eine erhebliche Verbesserung des Signal-zu-Hintergrund-Verhältnisses bei der HBT-Messung zu erwarten, da sowohl die Ramanstreuung am Diamanten als auch die Fluores-

zenz der Detektoren unterdrückt wird. Tatsächlich erfüllt die aufgenommene Kurve die theoretischen Erwartungen (s. Abb. 3.34).

Die in dieser Abbildung dargestellte Korrelationsfunktion wurde dabei normiert, indem durch die durchschnittlichen Zählraten der beiden Detektoren, durch das für das Histogramm verwendete Zeitintervall und durch die gesamte Integrationszeit dividiert wurde.

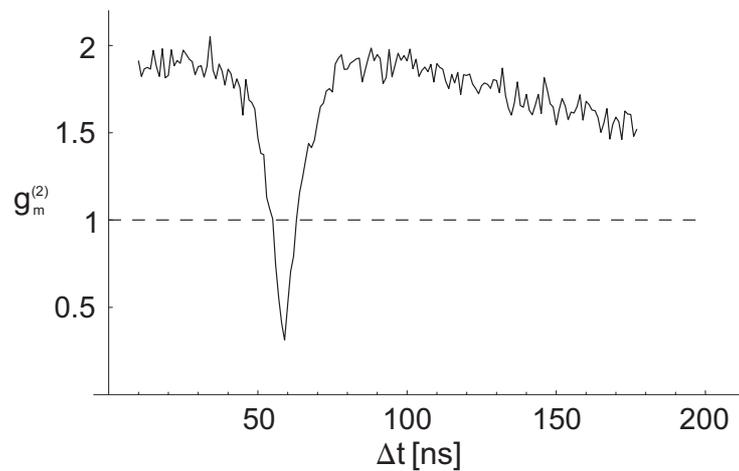


Abbildung 3.34: HBT-Messung bei 2,1 mW; Intensität des N/V-Zentrums : Hintergrundintensität: 9:1; Einbruchtiefe: ca. 75 %

Unter ausschließlicher Berücksichtigung des Signal-zu-Hintergrund-Verhältnisses kann man sich die erwartete Einbruchtiefe an folgendem Schema verdeutlichen.

Sei p_H die Wahrscheinlichkeit eines Hintergrundereignisses und p_S die Wahrscheinlichkeit eines Ereignisses des N/V-Zentrums.

Detektor 1 sieht Ereignis von	Detektor 2 sieht Ereignis von	Wahrscheinlichkeit dieses Falles	Korrelation g dieses Falles
N/V-Zentrum	N/V-Zentrum	$p_S \cdot p_S$	0
Hintergrund	N/V-Zentrum	$p_H \cdot p_S$	1
N/V-Zentrum	Hintergrund	$p_S \cdot p_H$	1
Hintergrund	Hintergrund	$p_H \cdot p_H$	1

Das heißt, der Mittelwert dieser verschiedenen Korrelationen g beträgt:

$$g_{theor}^{(2)}(\Delta t = 0) = 2p_H \cdot p_S + p_H \cdot p_H = 1 - p_S^2. \quad (3.39)$$

Für die in Abb. 3.34 bestehende Wahrscheinlichkeit $p_S = 0,89$ würde man also einen Einbruch der Kurve um ca. 79 % erwarten. Die beobachtete Einbruchtiefe von 75 % stimmt sehr gut mit diesem theoretischen Wert überein.

Wegen der Verminderung des Einbruchs durch die Zeitungenauigkeit der Detektoren (s. Abschnitt 3.4.3) ist eine genauere Vorhersage der Einbruchtiefe allein aus dem Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis auch nicht möglich.

Kapitel 4

Vergleich mit anderen Experimenten

Da das Interesse an „fundamentalen“ quantenmechanischen Experimenten, z.B. an Quanteneffekten an einzelnen Systemen, seit der „Erfindung“ der Quantenmechanik besteht, existieren auch vielfältige Ansätze zur Realisierung einer Einzel-Photonen-Quelle.

Wohl am naheliegendsten ist dabei die Verwendung eines einzelnen isolierten Atoms oder Ions, bei dem ein Elektron mit Hilfe eines Lichtfelds aus dem Grundzustand in einen angeregten Zustand gehoben wird. Der anschließende Zerfall des Elektrons in den Grundzustand des Atoms erzeugt dann ein Photon einer charakteristischen Wellenlänge. Aufgrund der nicht vernachlässigbaren Zeit, die dieser Zerfallsprozess in Anspruch nimmt, kann immer nur ein Photon zu einer bestimmten Zeit abgestrahlt werden. Unter Vernachlässigung des Hintergrunds handelt es sich also um eine perfekte Einzel-Photonen-Quelle.

Zu diesem Ergebnis kamen bereits 1987 Diedrich und Walther mit einem in einer Radiofrequenz-Falle gefangenen Ion [26]. Sie beobachteten bei einem bewegungs- und hintergrundkorrigierten HBT-Experiment bei einer Zeitdifferenz von 0 ns einen Einbruch der Korrelationsfunktion um 100 %. In neueren Experimenten mit gefangenen Atomen widmet man sich nun einer Erhöhung der Rate der einzelnen Photonen [27].

Diese Resultate werden jedoch durch einige Nachteile beeinträchtigt. So benötigen derartige Experimente Ultrahochvakuum und komplizierte Lasersysteme, was einen immensen Aufwand impliziert und die spätere Anwendung als Verschlüsselungsquelle erheblich in Frage stellt. Außerdem können die Ionen und Atome keine beliebig lange Zeit in der Falle gehalten werden; es kommt immer wieder zum Verlust des Ions, vor allem durch Stöße mit Hintergrundatomen.

All diese Nachteile existieren bei den in dieser Arbeit verwendeten N/V-Zentren nicht. Der Vorteil der gefangenen Atome bzw. Ionen gegenüber den N/V-Zentren im Diamant besteht darin, dass sie ein viel engeres Spektrum aussenden. Dies wäre jedoch auch bei den Farbzentren im Diamant der Fall, wenn sie auf extrem niedrige Temperaturen abgekühlt würden. Denn dann könnten die diversen Schwingungsmoden des Diamantgitters nicht mehr angeregt werden und die Phononenverbreiterung des Spektrums wäre nicht mehr möglich.

Ein dem hier vorliegenden Experiment ähnlicher Ansatz besteht in der Anregung von Farbstoffmolekülen, die entweder in einem Festkörper oder in einer Flüssigkeit eingebettet sind.

Einige Arbeiten beschäftigen sich hierbei mit in Flüssigkeiten gelösten Farbstoffmolekülen. Dabei wird jedoch durch die ständige Bewegung der Moleküle innerhalb der Lösung der Einzel-Photonen-Charakter völlig verwischt (z.B. [28]).

Die meisten derartigen Experimente untersuchen verschiedene Farbstoffmoleküle in kristallinen Körpern oder Polymeren (z.B. [29], [30]), und können dabei nichtklassische Eigenschaften des ausgesandten Lichts feststellen. Brunel et al. gelang es sogar, die vom Farbstoff ausgesandten Photonen mit einem Radiofrequenz-Feld, dessen Frequenz durch eine Resonanz gefahren wurde, zeitlich genau auszulösen [31]. Dabei führten beachtliche 74 % der Anregungsresonanzen auch zu einem ausgesandten einzelnen Photon. Doch diese Experimente liefen bei Temperaturen nahe dem absoluten Nullpunkt ab, was ihre spätere Anwendung ebenfalls verkompliziert. In einem neueren Experiment beobachteten Fleury et al. Farbstoffmoleküle in einem kristallinen Körper bei Zimmertemperatur und konnten dabei ebenfalls Einzel-Photonen-Charakter des abgestrahlten Lichts feststellen [32].

Ein wesentlicher Nachteil dieses Verfahrens liegt in der geringen Lebensdauer der Farbstoffmoleküle. Bei Zimmertemperatur sind bereits nach 10^9 emittierten Photonen, d.h. bei ständiger Anregung nach wenigen Minuten, die Moleküle zerstört. Bei einer späteren Anwendung als Einzel-Photonen-Quelle würde das bedeuten, dass alle paar Minuten automatisch nach einem neuen Molekül gesucht werden müsste.

Dies steht im Gegensatz zu den sehr stabilen N/V-Zentren, deren Lebensdauer im vorliegenden Experiment keine Grenze gesetzt werden konnte, da oft wochenlang an dem selben Zentrum gemessen wurde, ohne eine Veränderung zu bemerken (d.h. es können mehr als 10^{13} Photonen ausgesendet werden).

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass das hier vorliegende Experiment nicht nur eine stabile Einzel-Photonen-Quelle darstellt, sondern zusätzlich auch eines nur sehr geringen Aufwands bedarf.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit ist es gelungen, mit Hilfe eines selbstgebauten, konfokalen Mikroskops einzelne N/V-Zentren im Ib-Diamant gezielt anzuregen. Die Identität dieser Zentren konnte durch die aufgenommenen Spektren bestätigt werden. Für die Eignung dieser Zentren als Einzel-Photonen-Quelle spricht der hohe Einbruch in der (nicht auf Hintergrund korrigierten) Korrelationsfunktion von bis zu 75 %, wie er beim HBT-Experiment gemessen wurde.

Die Vorteile dieses Experiments gegenüber anderen Versuchen, eine Einzel-Photonen-Quelle zu realisieren, liegen hauptsächlich in dem viel geringeren Aufwand und der hervorragenden Stabilität der Zentren. Es wurden mehr als 10^{13} emittierte Photonen aus einem Zentrum beobachtet.

Nachdem für die gezielt angeregten N/V-Zentren Einzel-Photonen-Charakter nachgewiesen werden konnte, bietet es sich nun an, diesen Ansatz weiterzuverfolgen und zu verbessern.

Zunächst ist es für eine Anwendung in der Quantenkryptographie erforderlich, die einzelnen Photonen zu genau definierten Zeitpunkten versenden zu können. Diese Anforderung ist einfach mit einem gepulsten Anregungslaser zu bewältigen.

Ein schwierigeres Problem des derzeitigen Aufbaus stellt die geringe Aufsammeleffizienz dar. Um sie zu verbessern, könnte man evtl. ein Objektiv mit höherer Apertur verwenden, und so einen größeren Raumwinkel des abgestrahlten Lichts erfassen, oder komplett andere Sammeloptiken verwenden.

Da die N/V-Zentren abgesehen von ihrer Häufigkeit in synthetischem Diamant nichts Besonderes im Vergleich zu anderen Fehlstellen auszeichnet, ist es auch nicht abwegig, einmal andere Verunreinigungen von Diamant - oder allgemein optische Zentren in Festkörpern - auf die selbe Weise zu untersuchen. Vielleicht weisen diese im Vergleich zu den hier verwendeten Zentren

Vorteile auf, wie z.B. ein engeres Spektrum.

Zu guter Letzt ist es natürlich für die spätere Anwendung nötig, den hier verwendeten Aufbau um einiges kompakter zu gestalten. Dies dürfte jedoch mit den inzwischen möglich gewordenen grünen Lasern, die in der Größe mit Laserdioden vergleichbar sind, und entsprechender Mikrooptik zu verwirklichen sein.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass man mit dem hier vorliegenden Ansatz und den eben erwähnten Verbesserungsmöglichkeiten dem Ziel einer praktikablen Einzel-Photonen-Quelle wieder einen wichtigen Schritt näher gekommen ist.

Literaturverzeichnis

- [1] P. Zarda, *Quantenkryptographie, Ein Experiment im Vergleich*, Diplomarbeit an der Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Innsbruck, 1999
- [2] Ch. Marand, P.D. Townsend, *Opt. Lett.* **20** (16), 1695 (1995)
- [3] R.J. Hughes, G.G. Luther, G.L. Morgan, C.G. Peterson, C. Simmons, *Lecture Notes in Computer Science* **1109**, 329 (1996)
- [4] Gilles Brassard, Norbert Lütkenhaus, Tal Mor, Barry C. Sanders, *xxx.lanl.gov*, quant-ph/9911054 (1999)
- [5] J.E. Field (Ed.), *The Properties of Natural and Synthetic Diamond*, Academic Press, 1992
- [6] A. Paoletti und A. Tucciarone (Ed.), *Proceedings of the International School of Physics „Enrico Fermi“, Course CXXXV, The Physics of Diamond*, IOS Press, 1997
- [7] L. du Preez, Ph. D Thesis, University of Witwatersrand (1965), siehe auch [13]
- [8] G. Davies, M.F. Hamer, *Proc. R. Soc. Lond. A.* **348**, 285-298 (1976)
- [9] A.T. Collins, M.F. Thomaz, M.I.B. Jorge, *J. Phys. C* **16**, 2177-2181 (1983)
- [10] A. Mainwood, *Phys. Rev. B* **49** (12), 7934 (1994)
- [11] R.T. Harley, M.J. Henderson, R.M. Macfarlane, *J. Phys. C* **17**, L233 (1984)
- [12] N.R.S. Reddy, N.B. Manson, E.R. Krausz, *J. Lumin.* **38**, 46 (1987)

- [13] A. Dräbenstedt: *Hochauflösende Spektroskopie und Mikroskopie einzelner Moleküle und Farbzentren bei tiefen Temperaturen*, Dissertation an der Fakultät der Naturwissenschaften der TU Chemnitz, 1999
- [14] Ch. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000)
- [15] P. Pavone, K. Karch, O. Schütt, W. Windl, D. Strauch, Phys. Rev B **48**, 3156 (1993)
- [16] Ch. Kittel: *Einführung in die Festkörperphysik*, Dt. Ausg. neu bearb. von J.M. Greß und A. Lessard, Oldenbourg Verlag, 1999 (12. Auflage)
- [17] Ch.C. Davis: *Lasers and Electro-Optics. Fundamentals and Engineering*, Cambridge University Press, 1996
- [18] F. und L. Pedrotti, W. Bausch, H. Schmidt: *Optik: Eine Einführung*, Prentice Hall, 1996
- [19] E. Hecht: *Optics, Second Edition*, Addison-Wesley Publishing Company, 1987
- [20] M. Minsky (1957): US Patent #3013467, Microscopy Apparatus
- [21] <http://www.science.uwaterloo.ca/physics/research/confocal/intro.html>
- [22] J.B. Pawley (Ed.): *Handbook of Biological Confocal Microscopy*, Plenum Press, 1989
- [23] M. Young: *Optik, Laser, Wellenleiter: mit zahlreichen Beispielen und 133 Aufgaben mit vollständigen Lösungen*, neu bearb. und übers. von B. Fleck, Springer-Verlag, 1997
- [24] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, C. von Borczyskowski, Science **276**, 2012 (1997)
- [25] H. Paul: *Photonen; Eine Einführung in die Quantenoptik*, B.G. Teubner Stuttgart, 1995
- [26] F. Diedrich, H. Walther, Phys. Rev. Lett. **58**, 203 (1987)
- [27] A. Kuhn, M. Hennrich, T. Bundo, G. Rempe, Appl. Phys. B **69**, 373 (1999)
- [28] S.C. Kitson, P. Jonsson, J.G. Rarity, P.R. Tapster, Phys. Rev. A **58**, 620 (1998)

- [29] T. Basché, W.E. Moerner, M. Orrit, H. Talon, *Phys. Rev. Lett* **69**, 1516 (1992)
- [30] Ph. Tamarat, B. Lounis, J. Bernard, M. Orrit, S. Kummer, R. Kettner, S. Mais, Th. Basch, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1514 (1995)
- [31] Ch. Brunel, B. Lounis, Ph. Tamarat, M. Orrit, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2722 (1999)
- [32] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, U.P. Wild, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1148 (2000)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all jenen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Allen voran danke ich Prof. Dr. Harald Weinfurter, der mir diese Arbeit durch Aufnahme in seine Arbeitsgruppe ermöglicht hat. Er hat es geschafft, alle meine Vorurteile über Professoren auszuräumen, indem er für meine Probleme stets ein offenes Ohr hatte, in den entscheidenden Augenblicken des Experiments auch mal selbst im Labor mit Hand anlegte und insgesamt eine offene Atmosphäre in der Arbeitsgruppe geschaffen hat, in der man nie Angst haben musste, eine „dumme“ Frage zu stellen.

Ein besonderer Dank gilt auch Dr. Christian Kurtsiefer, der mich mit seiner Begeisterung für die Physik¹ oft mitgerissen und aus meinen „Motivationslöchern“ geholt hat. Egal mit was für Fragen ich bei ihm ankam², wurde er es nicht leid, mir Dinge zu erklären, die man in einem durchschnittlichen Physikstudium eben nicht lernt.

Außerdem bedanke ich mich bei Patrick Zarda, der mit mir gemeinsam an diesem Projekt gearbeitet hat und bereit war, mir alle organisatorischen und elektronischen Arbeiten vom Hals zu halten³. Auch bei meinem ersten physikalischen Vortrag im „Greenhorn-Meeting“ über unser Projekt hat er mich wunderbar unterstützt und versucht, mir mein Lampenfieber zu nehmen.

Nicht zu vergessen sind natürlich alle Personen, die ich aufgrund meiner bescheidenen Computerkenntnisse ständig mit meinen Fragen behelligt⁴ und von ihrer Arbeit abgehalten habe. Namentlich sind das Markus Oberparleiter, Oliver Schulz, Markus Greiner und alle, die gerade zufällig über den Gang liefen, wenn ein Problem auftauchte :-))

Mein Dank gilt auch allen weiteren Mitgliedern unserer Gruppe, nämlich Markus Weber, Jürgen Volz, Manfred Eibl und Sascha Gaertner, für die

¹ „Geh'n wir ins Labor zum Rumspielen; es ist wieder neues Spielzeug angekommen!“

² „Wie schafft man eigentlich mit so einem LötKolben?“

³ „Du bist ja nur so kurz da! Da musst Du Dich nicht mit sowas rumschlagen!“

⁴ „Wie kann man nochmal so ein eps-File erzeugen?“

verschiedensten Diskussionen und den vielen Spaß, den ich mit ihnen hatte⁵.

Zu guter Letzt bedanke ich mich noch bei allen Korrekturleserinnenn und -lesern dieser Arbeit und bei allen Mitstudenten und -studentinnen, von denen ich mir die Vorlesungsskripts der von mir aus Zeitgründen geschwänzten Veranstaltungen kopieren durfte.

⁵ „Was bedeutet eigentlich 30% Regenwahrscheinlichkeit?“

Erklärung

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

Sonja Mayer
München, 01. 05. 2000