

Kopplung von NV-Zentren an Nanofasernmoden

Masterarbeit
von
Daniel Burchardt



29. März 2012

Arbeitsgruppe Prof. Dr. Harald Weinfurter

Fakultät für Physik der
Ludwig-Maximilians-Universität
München

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Einzelphotonenquellen	5
2.1.1	Korrelationsfunktion erster und zweiter Ordnung	5
2.1.2	Quantenmechanische Formulierung	8
2.1.3	Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer	10
2.2	NV-Zentren in Diamant	11
2.2.1	Farbzentren	12
2.2.2	NV-Zentren	13
2.2.3	Diamantnanokristalle	18
2.3	Gezogene optische Glasfasern	21
2.3.1	Allgemeine Eigenschaften gezogener Fasern	21
2.3.2	Optische Eigenschaften gezogener Fasern	22
2.3.3	Kopplung zwischen Nanofasern und Partikel auf der Oberfläche	23
3	Charakterisierung von Diamantnanokristallen auf einem Glassubstrat	27
3.1	Herstellung der Proben	27
3.2	Experimenteller Aufbau	28
3.3	Signal-zu-Rausch Verhältnis	31
3.4	Auflösungsvermögen	32
3.5	NV-Spektren und Einzelphotonenstatistik	35
3.6	Polarisations- und leistungsabhängige Messungen	40
3.7	Bestimmung der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums	43
3.8	Weitere Eigenschaften der NV Fluoreszenz	46
4	Kopplung von NV-Zentren an eine optische Nanofaser	49
4.1	Aufbau und Stabilitätsmessungen	49
4.2	Aufbringen der Diamantnanokristalle an die Fasertaille	52
4.3	Eigenschaften von Diamantnanokristallen auf Nanofasern	57
4.4	Experimentelle Überprüfung der Kopplung von NV-Zentren an eine Nanofaser	59

4.5	Notwendige Optimierungen für eine faserdetektierte Einzelphotonenemission	62
5	Zusammenfassung und Ausblick	67
A		71
A.1	Herstellung <i>getaperter</i> Glasfasern	71
A.2	Chemische Eigenschaften von Nanodiamanten	72
A.3	Präparation der planaren Substrate	73
A.4	Präparation der Nanofasern	74
A.5	Kalibrierung des Spektrometers	74
A.6	Bestimmung der Laserleistung	75
A.7	Polarisationskompensation	76
	Literaturverzeichnis	79

Kapitel 1

Einleitung

Die Erforschung der Eigenschaften von Licht ist ein Kernthema der Physik. Besonderes Interesse erregen dabei in der aktuellen Forschung die nichtklassischen Eigenschaften [1], die eine Überprüfung der Vorhersagen der Quantenelektrodynamik ermöglichen. In der theoretischen Behandlung resultieren die nichtklassischen Eigenschaften aus einer Quantisierung des elektromagnetischen Feldes [2]. Wichtige Beispiele für nichtklassische Zustände des elektromagnetischen Feldes sind Squeezing [3] und Einzelphotonenzustände. Letztere wurden erstmals 1977 untersucht [4] und sie versprechen eine Vielzahl von Anwendungen in der Quantenkommunikation, z.B. der Quantenkryptographie, zur absolut sicheren Schlüsselerzeugung auf Basis der Quantenmechanik [5]. Ein anderes Anwendungsgebiet für Einzelphotonenquellen ist der Quantencomputer, wobei manche Ansätze dazu die Verwendung einzelner Photonen als *qubits* vorschlagen [6] [7]. Bei Quantencomputermodellen auf der Basis von atomaren *qubits*, werden einzelne Photonen zur Übertragung der Quantenzustände verwendet.

Die gezielte Erzeugung einzelner Photonen ist durch die Verwendung eines quantenmechanischen Zwei-Niveau-Systems möglich. Dabei emittiert das System im zeitlichen Rahmen der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands ein Photon und relaxiert in den Grundzustand. Die Emission eines zweiten Photons ist erst nach einer erneuten Anregung möglich, wodurch die emittierten Photonen zeitlich getrennt auftreten. Diese zeitliche Trennung wird als *Antibunching* bezeichnet. Die Suche nach geeigneten Systemen für die Einzelphotonenemission liefert eine Vielzahl an Kandidaten. Darunter sind neben einzelnen Atomen und Molekülen auch Festkörpersysteme, wie selbstorganisierte Quantenpunkte in Halbleiterstrukturen oder Farbzentren im Diamantgitter [8] zu finden. Das am häufigsten untersuchte Farbzentrum ist das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum (engl. *nitrogen-vacancy-center*, NV-Zentrum) [9] [10] [11]. Dieses ist in natürlichen Diamanten enthalten und kann durch Fluoreszenzspektroskopie unter Zuhilfenahme eines Konfokalmikroskops als Einzelphotonenquelle genutzt werden. Dabei hat es wesentliche Vorteile gegenüber anderen Einzelphotonenemittern. Um z.B. einzelne Atome für diese Zwecke zu nutzen wird eine Atomfalle in einer Vakuumkammer zur Detektion und Untersuchung der Einzelphotonencharakteristik benötigt. Moleküle sind in dieser Hinsicht einfacher zu

handhaben, jedoch neigt die Fluoreszenz eines Moleküls dazu, nach einer begrenzten Anzahl an Emissionen schwächer zu werden, was als *Photobleaching* bezeichnet wird. Zusätzlich können Fallenzustände im Umfeld des Moleküls die Fluoreszenz zeitweise unterbrechen. Die daraus resultierenden Intensitätsschwankungen der Fluoreszenz sind als *Blinking* bekannt. Festkörperbasierte Quantenpunkte zeigen viele positive Eigenschaften in der Einzelphotonenemission. Die Ausbeute an Photonen ist bei diesen Quellen enorm hoch und die Stabilität der Emission meist gewährleistet. Dennoch ist ihre Anwendbarkeit an zusätzliche Bedingungen geknüpft. So ist die Einzelphotonenemission auf sehr niedrige Temperaturen beschränkt, was den Einsatz eines Kryostaten erfordert. NV-Zentren in Diamant hingegen zeigen *Antibunching* selbst bei Raumtemperatur, erfordern keine optischen Fallen, da sie fest ins Diamantgitter eingebunden sind, und weisen eine stabile Fluoreszenz auf. Diese Eigenschaften machen NV-Zentren als Einzelphotonenquelle zu einem wichtigen Gegenstand der aktuellen Forschung. Für eine effiziente Nutzung werden jedoch Methoden zur Steigerung der Ausbeute der NV-Fluoreszenz benötigt.

Eine einfache Möglichkeit zur Aufsammlung der NV-Fluoreszenz ist die Verwendung eines Mikroskopobjektivs. Die detektierte Emission ist dabei sowohl durch das Objektiv, das nur einen begrenzten Raumwinkel sieht, als auch durch die optischen Eigenschaften von Diamant begrenzt. Die aufsammelbare NV-Fluoreszenz aus einem makroskopischen Diamantkristall ist durch Brechung und Totalreflexion an der Diamant-Luft Grenzschicht limitiert. Dadurch wird der Anteil der Fluoreszenz, der von dem Mikroskopobjektiv aufgesammelt werden kann, zusätzlich reduziert. Diese Reduktion der Ausbeute kann durch die Verwendung von Diamantnanokristallen umgangen werden. Diese sind deutlich kleiner als die Wellenlänge des Fluoreszenzlichts, wodurch die Brechung unterdrückt wird. Dennoch bleibt das grundsätzliche Problem der limitierten Aufsammeleffizienz eines Mikroskopobjektivs bestehen.

Eine Lösung des Problems der Aufsammeleffizienz stellt die Kopplung von NV-Zentren an optische Wellenleiter dar. Dazu werden gezogene (engl. *tapered*) optische Nanofasern verwendet, deren Durchmesser im zentralen Bereich der Fasertaille wenige hundert Nanometer beträgt. In diesem Bereich wird ein Großteil der Leistung einer propagierenden Mode im außerhalb der Faser liegenden evaneszenten Feld der Faser geführt. Befinden sich auf der Fasertaille Diamantnanokristalle mit NV-Zentren, so besteht ein relativ großer (bis zu 30 %) Überlapp zwischen der Emissionsmode eines NV-Zentrums mit der geführten Mode der Nanofaser. Dadurch besteht die Möglichkeit der Aufsammlung der NV-Fluoreszenz über die optische Faser, womit eine höhere Photonen ausbeute möglich ist. Ein zusätzlicher Vorteil dieser Technik besteht in der Tatsache, dass aufgesammelte Fluoreszenzphotonen bereits in einer optischen Faser propagieren. Dies erleichtert die Integration in komplexere integrierte optische Systeme.

In dieser Arbeit werden Eigenschaften der Fluoreszenz von NV-Zentren in Diamantnanokristallen untersucht, die Kopplung von NV-Zentren an eine optische Nanofaser experimentell realisiert und der Fortschritt in Richtung einer fasergekoppelten Einzelphotonenquelle aufgezeigt. Dazu werden im folgenden Abschnitt die theoretischen Grundlagen von Einzelphotonenquellen, die wesentlichen Eigenschaften des NV-Zentrums und die

Kopplung der NV-Fluoreszenz an eine Nanofaser vorgestellt. Kapitel 3 beschäftigt sich mit der experimentellen Untersuchung der Fluoreszenzeigenschaften von NV-Zentren in Nanokristallen, die auf planaren Substraten aufgebracht sind. Charakteristische Messungen sind die Aufnahme des Spektrums, die Verifizierung der Einzelphotonenemission anhand der Photonenstatistik, Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung und -polarisation, sowie die Ermittlung der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums. Kapitel 4 stellt die Resultate zur Kopplung von NV-Zentren an Nanofasern und einen Ausblick auf die Realisierung von fasergekoppelten Einzelphotonenquellen vor. Als Ausblick für weitere Experimente in unserer Gruppe dient Kapitel 5, welches das Vorhaben der Kombination eines Konfokalmikroskops mit einem Rasterkraftmikroskop (engl. *atomic force microscope*, AFM) beschreibt, das zur Manipulation der Nanokristalle dienen soll.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Einzelphotonenquellen

Die wesentliche Eigenschaft einer Einzelphotonenquelle zeigt sich in der Photonenzahlstatistik des emittierten Lichts. Die Photonenzahlstatistik beschreibt die zeitliche Abfolge der emittierten Photonen, bzw. der Detektionszeitpunkte. Um die Photonenzahlstatistik quantitativ untersuchen zu können, ist die Einführung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ nötig. Diese folgt aus der Untersuchung der Kohärenz einer Lichtquelle, wobei Kohärenz erster Ordnung die Korrelationen zwischen zwei elektrischen Feldern einer elektromagnetischen Welle beschreibt und Kohärenz zweiter Ordnung sich auf Korrelationen zwischen Lichtintensitäten bezieht, die im Teilchenbild der Anzahl an Photonen im Lichtfeld entsprechen. Anschaulich beschreibt $g^{(2)}(\tau)$ die statistische Verteilung der Zeitabstände zweier emittierter Photonen einer Lichtquelle. Beide Korrelationsfunktionen liefern wesentliche Erkenntnisse zur Charakterisierung des Lichtfeldes und sollen deshalb in diesem Abschnitt mathematisch beschrieben und Zusammenhänge aufgezeigt werden.

2.1.1 Korrelationsfunktion erster und zweiter Ordnung

Interferenzexperimente sind ein wesentliches Gebiet der Optik, die zur Vermessung des Lichtfeldes genutzt werden. Als Standardbeispiel dient der Young'sche Doppelspaltversuch, den Thomas Young 1802 zum ersten Mal mit optischem Licht durchführte. In diesem Experiment trifft Licht auf einen Doppelspalt und die davon ausgehenden Teilwellen überlagern sich hinter diesem. Die Interferenz zweier elektromagnetischer Felder lässt sich allgemein beschreiben als

$$\tilde{E}(r, t) = \tilde{E}_1(r, t) + \tilde{E}_2(r, t). \quad (2.1)$$

Die detektierte Intensität (gemittelt über ein Zeitintervall T) am Ort r des Detektors ist also

$$\langle I(r, t) \rangle \propto \left\langle \left| \tilde{E}(r, t) \right|^2 \right\rangle_T = \left\langle \left| \tilde{E}_1(r, t) \right|^2 \right\rangle_T + \left\langle \left| \tilde{E}_2(r, t) \right|^2 \right\rangle_T + 2 \Re \left[\langle E_1^*(r, t) E_2(r, t) \rangle_T \right]. \quad (2.2)$$

Die ersten beiden Terme entsprechen den Intensitäten der einzelnen Teilwellen bei Abwesenheit der anderen Teilwelle. Der letzte Term beschreibt die Interferenz beider elektrischer Felder. Eine Verallgemeinerung davon stellt die Korrelationsfunktion erster Ordnung

$$g^{(1)}(r_1, r_2, \tau) = \frac{\langle E^*(r_1, t) E(r_2, t + \tau) \rangle}{\sqrt{\langle E^*(r_1, t) E(r_1, t) \rangle \langle E^*(r_2, t + \tau) E(r_2, t + \tau) \rangle}} \quad (2.3)$$

dar. Da in dieser Form zwei elektrische Felder miteinander korreliert werden, wird die Funktion auch Amplitudenkorrelation genannt. Diese ist ein Maß für die Kohärenz des Lichtes. Analog zur Einteilung der Kohärenz des Lichtfeldes wird zwischen räumlicher (für $\tau = 0$) und zeitlicher (gemessen am Ort $r = r_1 = r_2$) Korrelationsfunktion unterschieden.

Zur Ermittlung der $g^{(1)}$ -Funktion aus einem Experiment bietet sich der Interferenzkontrast an. Dieser ist definiert als

$$V = \frac{\langle I \rangle_{\max} - \langle I \rangle_{\min}}{\langle I \rangle_{\max} + \langle I \rangle_{\min}}, \quad (2.4)$$

wobei $\langle I \rangle_{\max}$ und $\langle I \rangle_{\min}$ der maximalen bzw. minimalen Intensität des Interferenzbildes entsprechen. Der Kontrast nimmt Werte zwischen 0 und 1 an. Für $V = 0$ spricht man von inkohärentem Licht, für $V = 1$ von kohärentem Licht.

Während die Kohärenz erster Ordnung die Phasenbeziehung zwischen zwei elektromagnetischen Wellen beschreibt, ist die Korrelation zweiter Ordnung eine Korrelation der Intensitäten. Analog zu Gleichung 2.3 wird die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung als Beziehung zwischen Intensitäten definiert

$$g^{(2)}(r_1, r_2, \tau) = \frac{\langle I(r_1, t) \cdot I(r_2, t + \tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = \frac{\langle E^*(r_1, t) E^*(r_2, t + \tau) E(r_2, t + \tau) E(r_1, t) \rangle}{\langle E^*(r_1, t) E(r_1, t) \rangle \langle E^*(r_2, t + \tau) E(r_2, t + \tau) \rangle}. \quad (2.5)$$

Diese wird auch Intensitätskorrelation genannt, mit der zeitabhängigen Intensität $I(r, t)$ und der zeitabhängigen Amplitude des elektrischen Feldes $E(r, t)$, wobei die Mittelung $\langle \rangle$ über ein langes Zeitintervall geht (wesentlich länger als die Schwingperiode des Lichtfeldes). Am häufigsten wird die zeitliche Korrelationsfunktion zweiter Ordnung betrachtet (mit $r_1 = r_2 = r$), die im folgenden weiter beschrieben wird. Man kann zeigen

(vgl. [8]), dass sich aus der klassischen Theorie (Maxwellgleichungen) Grenzen für die Intensitätskorrelation ergeben. Für alle reellen Funktionen $f(t)$ gilt

$$\langle f \rangle^2 \leq \langle f^2 \rangle \quad (2.6)$$

$$\langle f(t)f(t+\tau) \rangle \leq \langle f^2(t) \rangle. \quad (2.7)$$

Daraus folgt für die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung eine untere Schranke für $\tau = 0$

$$g^{(2)}(0) \geq 1 \quad (2.8)$$

und die Aussage, dass die Intensitätskorrelation ihren Maximalwert an der Stelle $\tau = 0$ hat

$$g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0). \quad (2.9)$$

Die Form der $g^{(2)}$ -Funktion hängt von der Art der Lichtquelle ab. Für einen monochromatischen Dauerstrichlasers (engl. *continuous wave*, cw-Laser) ist $g^{(2)}(\tau) = 1 \quad \forall \tau$. Bei thermischen Lichtquellen hingegen, deren Emission durch Stoßverbreiterung oder Doppler-Verbreiterung modifiziert ist, lässt sich die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung durch die Korrelationsfunktion erster Ordnung ausdrücken, wobei der Zusammenhang

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (2.10)$$

besteht. Der Verlauf der $g^{(2)}$ -Funktion einer solchen thermischen Lichtquelle bzw. von Laserlicht ist in Abbildung 2.1 zu sehen.

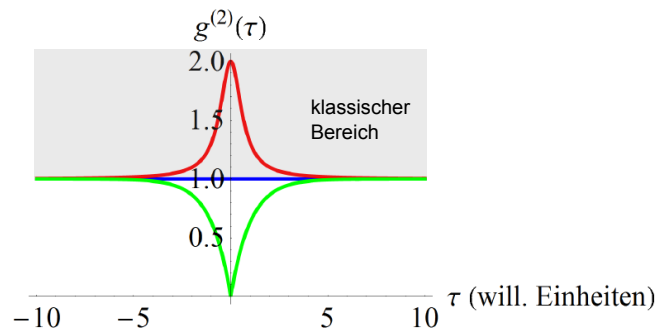


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung für eine thermische Lichtquelle (rot), Laserlicht (blau) und eine Einzelphotonenquelle (grün) mit $g^{(2)}(0) = 0$. Aus [12]

Eine Einzelphotonenquelle ist ein Photonenemitter, bei dem die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen zum gleichen Zeitpunkt zu emittieren 0 ist, also $g^{(2)}(0) = 0$ (Abbildung 2.1). In der klassischen Theorie (Gleichung 2.8) ist dieser Fall verboten. Eine Einzelphotonenquelle ist also ein rein quantenmechanisches Phänomen. Um den Einzelphotonenzustand theoretisch herzuleiten, muss die Quantifizierung des elektromagnetischen Feldes berücksichtigt werden.

2.1.2 Quantenmechanische Formulierung

Eine genaue quantenmechanische Formulierung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ist in Ref. [1] gegeben.

Im wesentlichen erhält man die $g^{(2)}$ -Funktion analog zum klassischen Fall, wenn man das elektrische Feld entsprechend dem Heisenberg Bild durch einen Operator

$$\begin{aligned}\hat{E}(t) &= i\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}}\hat{a}e^{-i\omega t} + i\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}}\hat{a}^\dagger e^{i\omega t} \\ &= \hat{E}^+(t) + \hat{E}^-(t)\end{aligned}\quad (2.11)$$

ersetzt, mit dem Erzeugungsoperator \hat{a}^\dagger und dem Vernichtungsoperator \hat{a} und der Energie eines einzelnen Photons $\hbar\omega$. Die Operatoren erfüllen dabei stets die Vertauschungsrelation $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$. Der Intensitätsoperator $\hat{I}(t)$ hat dann die Form

$$\hat{I}(t) = 2\epsilon_0 c \hat{E}^-(t)\hat{E}^+(t).\quad (2.12)$$

Der Zustand des elektrischen Feldes kann in der Fockbasis $\{|n\rangle\}$ ausgedrückt werden, wobei die Fockzustände Eigenvektoren des Hamiltonoperators eines harmonischen Oszillators

$$\hat{H}|n\rangle = \hbar\omega\left(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}\right)|n\rangle = \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega|n\rangle\quad (2.13)$$

und n positive, ganzzahlige Werte sind. Aus Gleichung 2.12 folgt die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}^-(t)\hat{E}^-(t+\tau)\hat{E}^+(t)\hat{E}^+(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{E}^-(t)\hat{E}^+(t) \rangle \langle \hat{E}^-(t+\tau)\hat{E}^+(t+\tau) \rangle}\quad (2.14)$$

$$= \frac{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a} \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a} \rangle^2},\quad (2.15)$$

die sich vom klassischen Fall dadurch unterscheidet, dass Erzeugungs- und Vernichtungsoperator nicht kommutieren und somit die klassischen Grenzen der $g^{(2)}$ -Funktion (Gleichung 2.8) nicht mehr gültig sind. Im Teilchenbild entspricht die Intensität der Anzahl der Photonen im Lichtfeld. Mit dieser Interpretation lässt sich die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung als Wahrscheinlichkeit verstehen, zwei Photonen im Zeitabstand τ zu detektieren. Mit der Vertauschungsrelation für Erzeugungs- und Vernichtungsoperator und dem Eigenwert $\hat{a}^\dagger \hat{a} = n$ aus Gleichung 2.13 kann die $g^{(2)}$ -Funktion in der Form

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\langle n \rangle^2} = \frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (2.16)$$

geschrieben werden. Fockzustände haben eine definierte Photonenzahl n , weshalb $\langle n \rangle = n$ und $(\Delta n)^2 = 0$ gilt. Für beliebige Zustände in der Fockbasis mit $(\Delta n)^2 > 0$ ist der Wert der Intensitätskorrelationsfunktion stets größer als für reine Fockzustände. Daraus folgt eine untere Schranke

$$g^{(2)}(\tau) \geq 1 - \frac{1}{\langle n \rangle} \quad \forall \langle n \rangle \geq 1, \quad (2.17)$$

die für $\langle n \rangle < 1$ gleich 0 wird. Für $\langle n \rangle = 1$ ist damit die Eigenschaft $g^{(2)}(0) = 0$ einer Einzelphotonenquelle erfüllt. Diese Bedingung wird auch als *Antibunching* bezeichnet. Dies bezeichnet den Effekt, dass Photonen einer Einzelphotonenquelle zeitlich klar getrennt detektiert werden und die Wahrscheinlichkeit ein zweites Photon zur gleichen Zeit zu detektieren gleich 0 ist. Das Lichtfeld mit dem Fockzustand $|n\rangle = |1\rangle$, hat eine Photonenzahl $n = 1$ ($(\Delta n)^2 = 0$). Dadurch ist nach Gleichung 2.17 die Bedingung an die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung für eine Einzelphotonenquelle erfüllt und dieser Zustand ist ein Einzelphotonenzustand. Für die Vollständigkeit sei erwähnt, dass der Photonenzustand für stark abgeschwächtes Laserlicht durch einen kohärenten Zustand

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{(n!)^{\frac{1}{2}}} |n\rangle \quad (2.18)$$

gegeben ist, mit $\langle n \rangle = \alpha$ und $(\Delta n)^2 = \alpha$. Aus Gleichung 2.16 ergibt sich dafür eine Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau) = 1 \quad \forall \tau$. Dies zeigt, dass die Verwendung stark abgeschwächter Laserpulse keinen Ersatz für Einzelphotonenquellen bietet.

Einzelphotonenemission kann also durch die Kenntnis der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung charakterisiert werden. Wie bereits erwähnt sind real existierende Einzelphotonenquellen in der Regel quantenmechanische Zwei-Niveau-Systeme. Eine Herleitung der $g^{(2)}$ -Funktion für dieses System wird im nächsten Abschnitt explizit für ein NV-Zentrum gegeben. Zunächst soll das Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer vorgestellt werden, mit dem die Intensitätskorrelationsfunktion gemessen werden kann.

2.1.3 Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer

Die Bestimmung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ist mithilfe eines Interferometers möglich, das 1954 von Robert Hanbury Brown und Richard Twiss vorgeschlagen wurde (Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer, HBT) [13] [14].

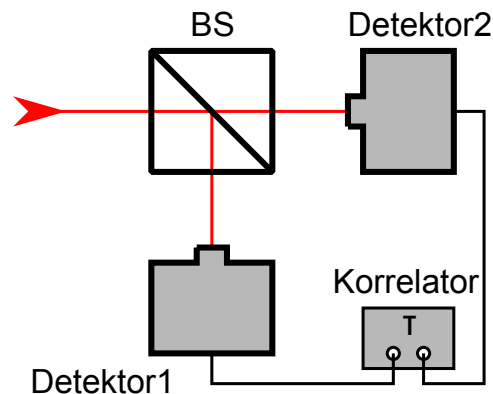


Abbildung 2.2: Aufbau eines Hanbury-Brown-Twiss-Interferometers zur Bestimmung der zeitlichen Korrelationsfunktion zweiter Ordnung.

Ein HBT-Interferometer das zur Bestimmung der zeitlichen Intensitätskorrelationsfunktion geeignet ist, ist in Abbildung 2.1.3 gezeigt. Licht einer beliebigen Lichtquelle wird von einem Strahlteiler (BS) in zwei Teilstrahlen aufgespalten und die beiden Intensitäten mit Detektoren gemessen. Die Ausgangssignale beider Detektoren werden in einem Korrelator zusammengeführt. Zur Bestimmung der Photonenzustand werden Einzelphotonendetektoren verwendet und Koinzidenzen zwischen den Detektoren untersucht. Aus einer quantenmechanischen Betrachtung eines Strahlteilers folgt, dass ein Histogramm der Koinzidenzen für unterschiedliche Detektionszeitunterschiede über einen langen Zeitraum direkt zur Korrelationsfunktion zweiter Ordnung führt [8].

Mit dem HBT-IF ist also eine experimentelle Untersuchung der Photonenzustand einer Lichtquelle möglich. Mit diesem Werkzeug lässt sich die Einzelphotonenemission von NV-Zentren nachweisen, die im folgenden Kapitel neben anderen wichtigen Merkmalen der NV-Fluoreszenz theoretisch beschrieben wird.

2.2 NV-Zentren in Diamant

Das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum (NV-Zentrum) [9] [10] [11] [15] basiert auf einem Defekt im Diamantgitter und kann mit optischen Methoden untersucht werden. Die NV-Fluoreszenz weist eine Einzelphotonenstatistik auf und eignet sich damit als Einzelphotonenquelle. Da es sich beim NV-Zentrum um ein komplexes System handelt, muss eine ausführliche Beschreibung sowohl die Festkörpereigenschaften der Diamantstruktur (Gitter, Bandstruktur), als auch die molekülähnlichen Besonderheiten eines Defektkomplexes beinhalten.

Diamant [16] besteht aus Kohlenstoffatomen, die in einem kubisch flächenzentriertem Gitter (engl. *face-centered-cubic*, FCC) mit zweifacher Basis $(0, 0, 0)$ und $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$ angeordnet sind. Die Atome sind sp^3 -hybridisiert, weshalb die kovalenten Bindungen zwischen den benachbarten Atomen identisch sind. Daraus folgt eine tetraedrische Anordnung der Atome und der Winkel zwischen benachbarten C-C Bindungen ist $109,5^\circ$ [17]. Durch die Stärke und die Richtungsabhängigkeit der kovalenten Bindung ergibt sich die besondere Härte der Diamantstruktur. Die elektronischen Eigenschaften von Diamant entsprechen denen eines Halbleiters mit einer breiten indirekten Bandlücke von $E_g = 5,4\text{eV} \hat{=} 230\text{nm}$. Deshalb ist reiner Diamant transparent für sichtbares Licht und erscheint als klarer, farbloser Kristall. Das Kristallgitter und die Bandstruktur sind in Abbildung 2.3 dargestellt.

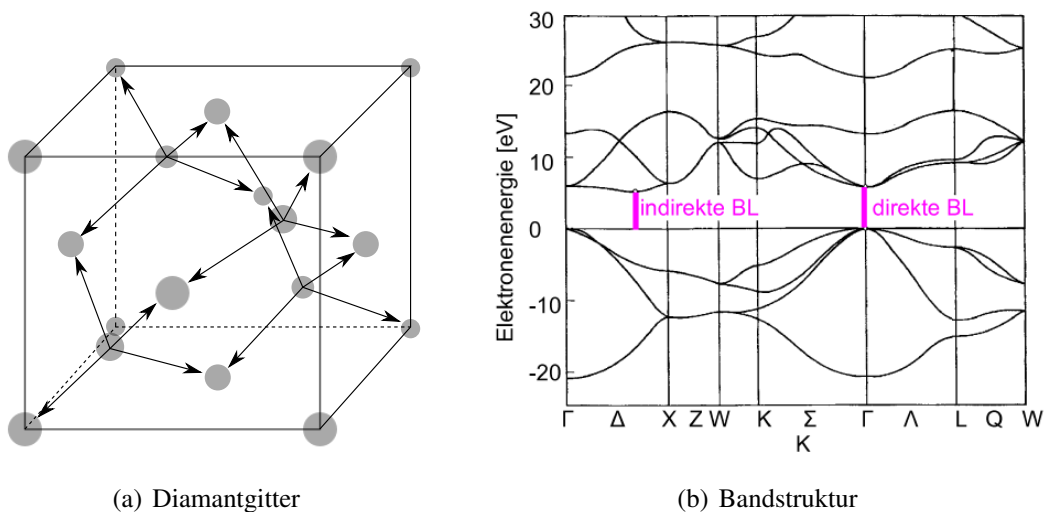


Abbildung 2.3: (a) Der Aufbau des Diamantgitters entspricht einem kubisch flächenzentriertem Gitter mit zweifacher Basis. Die Kohlenstoffatome (grau) sind sp^3 -hybridisiert und gehen tetraedrische Bindungen ein (Pfeile). (b) Bandstruktur mit indirekter Bandlücke (5,48eV). Die direkte Bandlücke beträgt 7,3eV. Dadurch ist Diamant ein Halbleiter mit einer besonders breiten Bandlücke. Die ausgezeichneten Punkte der Abszisse sind Punkte im reziproken Gitter. Aus [18]

Dennoch sind in der Natur farbige Diamanten vorzufinden. Die Ursache dafür sind De-

Defekte im Diamantgitter [16], die zum Beispiel in Form von Dotierungen vorkommen. Dadurch entstehen Zustände, die sich energetisch innerhalb der Bandlücke befinden und somit Zielniveaus für optische Übergänge bieten. Die Vielzahl möglicher Fehlstellen macht Diamant zu einem interessanten System, das für unterschiedliche Anwendungen genutzt werden kann.

2.2.1 Farbzentren

Diese Defekte können extrinsischer- oder intrinsischer Natur sein. Zu den extrinsischen Defekten gehören in erster Linie Fremdatome, die die Position eines Kohlenstoffatoms einnehmen und sowohl in natürlichen als auch industriellen Diamanten in hoher Konzentration vorkommen. Das am häufigsten vorkommende Element ist Stickstoff, das bis zu einer Massenkonzentration von 1% in natürlichem Diamant vorkommen kann. Aber auch Wasserstoff, Bor und Phosphor sind im Diamantgitter zu finden. Industrielle Diamanten enthalten große Anteile von Nickel, Cobalt und anderen Metallen, die in der Produktion bei hohem Druck und hoher Temperatur als Katalysatoren verwendet werden. Durch die hohe Bedeutung der Fremdatome (insbesondere des Stickstoffs) werden Diamanten entsprechend ihrer Verunreinigungen in 4 Klassen (I_a , I_b , II_a und II_b) eingeteilt. Im Prinzip können viele zusätzliche Atome durch Ionenimplantation in das Diamantgitter gebracht werden. Dabei wird das gewünschte Element ionisiert und in einem elektrischen Feld auf hohe Energien beschleunigt. Typische Energien sind in der Größenordnung 30 – 300 keV [19]. Ionen mit dieser kinetischen Energie können die Coulombbarriere des Kristalls überwinden und ein Kohlenstoffatom aus der Gitterposition entfernen. Die abgebremsten Ionen verbleiben im Gitter und können nach thermischem Ausheilen entweder die Position des entfernten Kohlenstoffatoms oder eine zwischenatomare Position einnehmen. Die Wirkung dieser extrinsischen Störstellen auf die elektronischen Eigenschaften des Diamanten ist unterschiedlich. Während Stickstoff (5. Hauptgruppe) ein zusätzliches Elektron besitzt und somit als Donor eingesetzt werden kann, ist Bor (3. Hauptgruppe) ein Akzeptor, dessen Energie 0,37eV oberhalb der Valenzbandkante liegt. Ist die Bor-konzentration ausreichend hoch, so wird der Diamant metallisch leitend und bei niedrigen Temperaturen supraleitend [20].

Im Gegensatz zu den extrinsischen Defekten sind intrinsische Defekte Unordnungen im reinen Kristallgitter ohne die Anwesenheit von Fremdatomen. Beispiele hierfür sind unter anderem Lücken im Kristallgitter (engl. *vacancy*), bei denen eine Gitterposition von keinem Kohlenstoffatom besetzt ist, oder die Platzierung eines Kohlenstoffatoms auf einer Position, die keinem Gitterpunkt entspricht. Letzteres ist sehr instabil und kommt lediglich in größeren Defektkomplexen vor.

Befinden sich sowohl intrinsische als auch extrinsische Fehler im Gitter, so können diese Störstellen-Komplexe bilden. Solche Komplexe zeichnen sich häufig durch eine ausgeprägte optische Aktivität aus. Beispielsweise zeigt ein Komplex aus Stickstoff- und Kohlenstoffatomen, die sich auf Zwischengitterpositionen befinden, starke Absorption im Infrarotbereich (1450 cm^{-1}) [21].

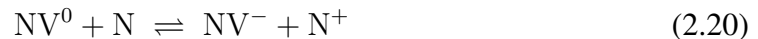
2.2.2 NV-Zentren

Da der häufigste extrinsische Defekt eine Stickstoffsubstitution und der häufigste intrinsische Defekt die Bildung einer Lücke im Gitter ist, ist der Komplex mit dem Namen Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum (engl. *nitrogen vacancy center*, NV-Zentrum) eines der bedeutendsten und am häufigsten untersuchten Farbzentren im Diamant.

Der Komplex besteht aus einem Stickstoffatom (N), das ein Kohlenstoffatom (C) im Diamantgitter ersetzt und einer benachbarten Gitterfehlstelle (V) (Abbildung 2.4(a)). Der Stickstoff fungiert als Donor eines Elektrons und es bildet sich ein neutral geladenes NV^0 -Zentrum



Ein weiterer Donor (in der Regel ein weiteres Stickstoffatom in der näheren Umgebung des NV-Zentrums) führt zu einem chemischen Gleichgewicht aus neutralem und negativ geladenem NV-Zentrum entsprechend der Reaktionsgleichung [22]:

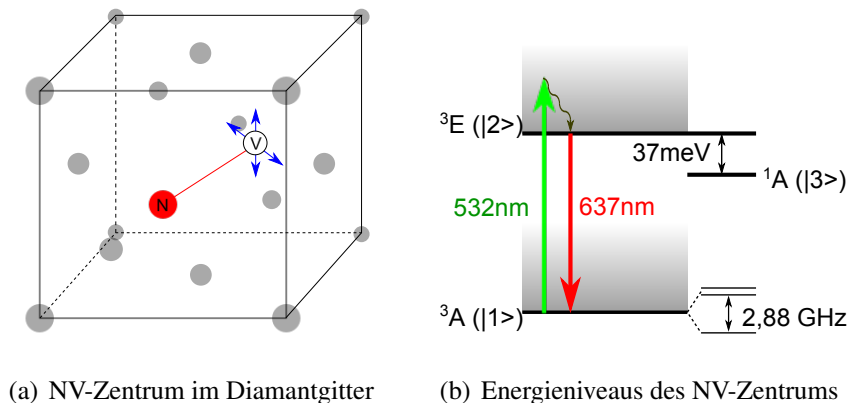


Die entstandenen NV-Zentren können also sowohl in der negativ geladenen als auch in der neutralen Form vorliegen.

Im weiteren soll ausschließlich das NV^- -Zentrum beschrieben werden. Das Energieniveauschema (Abbildung 2.4(b)) eines NV-Zentrums weist im wesentlichen drei Zustände auf. Den Triplet Grundzustand 3A , den angeregten Zustand 3E und einen metastabilen Zustand 1A , der auch *Shelving Level* genannt wird.

Für jeden elektronischen Zustand gibt es ein breites Band phononisch angeregter Zustände, die durch viele mögliche Schwingungsmoden des NV-Zentrums zustande kommen. Als Ausgangspunkt optischer Übergänge dienen jedoch in der Regel die phononischen Grundzustände, da die angeregten Schwingungsmoden sehr schnell (einige ps) nichtstrahlend relaxieren.

Für die optische Anregung des NV-Zentrums wird typischerweise Licht mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet. Der Zielzustand ist dabei einer der phononisch angeregten Zustände des elektronischen 3E -Zustands. Wie beschrieben folgt eine nichtstrahlende Relaxation in den phononischen Grundzustand, der nun strahlend in den elektronischen Grundzustand 3A übergehen kann, wobei der Zielzustand in der Regel ein phononisch angeregter Zustand ist. Die Wahrscheinlichkeiten für die phononischen Zielzustände ergeben sich aus dem Franck-Condon Prinzip [23]. Dieses beschreibt den Überlapp der vibronischen Wellenfunktion des Ausgangszustandes mit den möglichen vibronischen Zielwellenfunktionen des elektronischen Grundzustands. Dazu muss das Potential, das auf die Elektronen eines NV-Zentrums wirkt, bekannt sein. Aus Untersuchungen folgt, dass für



(a) NV-Zentrum im Diamantgitter

(b) Energieniveaus des NV-Zentrums

Abbildung 2.4: (a) Zusammensetzung eines NV-Zentrums aus einem Stickstoffatom und einer benachbarten Fehlstelle, die jeweils ein Kohlenstoffatom im Diamantgitter ersetzen. Das NV-Zentrum besitzt eine Symmetrieachse entlang der Verbindungslinie [NV] und Dipolübergänge sind für zwei entartete, orthogonale Dipole erlaubt, die senkrecht zur Symmetrieachse stehen (blaue Pfeile). (b) Energieniveauschema des NV-Zentrums entsprechend dem Drei-Zustands Modell mit ausgeprägten phononischen Seitenbändern (graue Bereiche). Die Tripletzustände 3A und 3E teilen sich in $m_s = 0, \pm 1$ auf. Das *Shelving Level* 1A ist ein metastabiler Zustand. Der grüne Pfeil entspricht einer typischen Anregung des NV-Zentrums, der rote Pfeil entspricht einem Übergang in den phononischen Grundzustand, der *zero phonon line* (ZPL) genannt wird.

die Beschreibung eines NV-Zentrums ein Doppelmuldenpotential (engl. *double well potential*, DWP) geeignet ist [23]. Das Potential ändert sich bei unterschiedlich angeregten elektronischen Niveaus (vgl. Abbildung 2.5), was eine räumliche Verschiebung der Wellenfunktionen zur Folge hat. Optimaler Überlapp ist also nicht für gleiche phononische Zustände gegeben, weshalb Übergänge zwischen gleichen vibronischen Zuständen eine geringe Übergangswahrscheinlichkeit haben. Die niedrigste Fluoreszenzwellenlänge, die einem Übergang in den phononischen Grundzustand entspricht und ca. 637 nm beträgt, wird *zero phonon line* (ZPL) genannt. Durch die Vielzahl der phononischen Seitenbänder ist das Fluoreszenzspektrum eines NV-Zentrums sehr breit. Das Absorptions- und Emissionsspektrum sind in Abbildung 2.6 dargestellt. Die beiden Spektren haben (nach Spiegelung an der ZPL) eine ähnliche Form und eine spektrale Breite von mehr als 100 nm.

Zusätzlich zum Grundzustand $|1\rangle$ und zum angeregten Zustand $|2\rangle$ ist die Existenz des *Shelving Levels* $|3\rangle$ zu beachten. Dieses verfügt über erlaubte nichtstrahlende Übergänge ausgehend vom angeregten Zustand mit einer Rate k_{23} , wohingegen Übergänge zum Grundzustand zu vernachlässigen sind. Wird ein angeregtes Elektron im *Shelving Level* „gefangen“, so kann keine Rekombination in den Grundzustand stattfinden, bevor das Elektron den metastabilen Zustand mit einer Rate k_{32} in den angeregten Zustand verlässt. Diese Überlegungen führen zu drei Ratengleichungen, die die Population der Zustände (Abbildung 2.4) im NV-Zentrum beschreiben

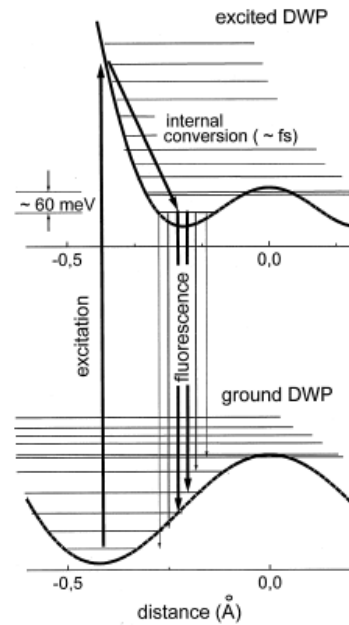


Abbildung 2.5: Franck-Condon-Prinzip. Das NV-Zentrum kann durch ein Doppelwellpotential (DWP) beschrieben werden. Dieses ändert seine Form für unterschiedlich angeregte Niveaus, wodurch der Überlapp der Wellenfunktionen verschiedener phononischer Zustände, der den Übergangswahrscheinlichkeiten entspricht, variiert wird. Aus [23]

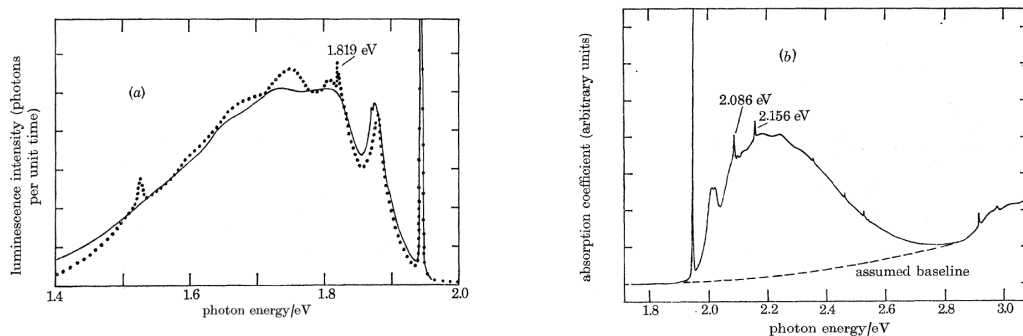


Abbildung 2.6: (a) Emissionsspektrum eines NV-Zentrums in *bulk* Diamant. Die scharfe Linie bei 1.945 eV entspricht der *zero phonon line* (ZPL). (b) Absorptionsspektrum. Aus [24]

$$\dot{\rho}_1 = -k_{12}\rho_1 + k_{21}\rho_2 \quad (2.21)$$

$$\dot{\rho}_2 = k_{12}\rho_1 - (k_{21} + k_{23})\rho_2 + k_{32}\rho_3 \quad (2.22)$$

$$\dot{\rho}_3 = k_{23}\rho_2 - k_{32}\rho_3. \quad (2.23)$$

In einer anderen Arbeit [8] wurde gezeigt, dass sich bei kontinuierlicher Anregung des Drei-Niveau-Systems ein Gleichgewicht einstellt, aus dem das Fluoreszenzverhalten und die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ermittelt werden kann. Ein Ergebnis ist das Sättigungsverhalten der NV-Fluoreszenz, das anschaulich dadurch erklärt werden kann, dass die Besetzung des angeregten Zustands begrenzt ist und die langen Lebensdauern der Zustände dafür sorgen, dass ab einer Sättigungsintensität $I_{\text{sat}} \propto P_{\text{sat}}$ eine weitere Erhöhung der Anregungsleistung P_e keine höhere Photonenausbeute zur Folge hat. Für das gegebene Drei-Niveau-System erhält man für die Emissionsrate

$$\Gamma(P_e) = \frac{\chi k_{21} P_e}{P_e + P_{\text{sat}}}, \quad (2.24)$$

mit der Konstanten $\chi = \frac{k_{32}}{k_{32} + k_{23}}$, die den Einfluss des Shelving-Levels widerspiegelt.

In [8] wird für ein Zwei-Niveau-System zusätzlich gezeigt, dass die Korrelation zweiter Ordnung aus Gleichung 2.15 abgeleitet werden kann, indem die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \hat{a}^\dagger und \hat{a} durch die Übergangsoperatoren $\hat{\pi}^\dagger = |2\rangle\langle 1|$ und $\hat{\pi} = |1\rangle\langle 2|$ ersetzt werden. Dieser Schritt folgt aus dem Wechselwirkungs-Hamiltonoperator eines Zwei-Niveau-Systems mit einem Lichtfeld, in dem die Terme $\hat{\pi}\hat{a}^\dagger$ (Emission eines Photons) und $\hat{\pi}^\dagger\hat{a}$ (Absorption eines Photons) vorkommen. Daraus folgen identische Übergangsraten $\{k_{ij}\}$ in beiden Operator Darstellungen. Analog zu dieser Vorgehensweise folgt für das Drei-Niveau-System, dass man die Intensitätskorrelationsfunktion erhält, indem die zeitliche Besetzung des angeregten Zustands $\rho_2(t)$ auf $\rho_2(\infty)$ normiert wird. Damit erhält man für das Drei-Niveau-System den Ausdruck [9]

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + c e^{-\frac{\tau}{\tau_1}} - (1 + c) e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} \quad (2.25)$$

mit

$$\tau_{1,2} = \frac{2}{A \pm \sqrt{A^2 - 4B}} \quad (2.26)$$

$$c = \frac{1 - \tau_1 k_{32}}{k_{32}(\tau_1 - \tau_2)} \quad (2.27)$$

$$A = k_{12} + k_{21} + k_{23} + k_{32} \quad (2.28)$$

$$B = k_{12}k_{23} + k_{12}k_{32} + k_{21}k_{32}. \quad (2.29)$$

Im einfacheren Fall eines zwei-Niveau Systems erhält man

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\frac{\tau}{\tau_0}} \quad (2.30)$$

mit $g^{(2)}(0) = 0$, wobei nacheinander emittierte Photonen durch die Zeitkonstante $\tau_0 = \frac{1}{k_{12}+k_{21}}$ getrennt sind. Somit ist dieses System eine Einzelphotonenquelle. Die Anregungsrate $k_{12} = a P_e$ ist dabei proportional zur Anregungsleistung und $k_{21} = \frac{1}{\tau_{NV}}$ ist das Inverse der Lebensdauer des angeregten Zustands. Eine gängige Interpretation ist, das Shelving Level als Fallenzustand zu verstehen, der die NV-Fluoreszenz nach der Zeit $\frac{1}{k_{23}}$ ausschaltet und nach $\frac{1}{k_{32}}$ wieder aktiviert. Dies führt zu Korrelationen in der $g^{(2)}$ -Funktion zu entsprechenden Zeiten τ , die Werte von $g^{(2)}(\tau) > 1$ bedingen. Mit dem vorgestellten Drei-Niveau-System lassen sich viele der experimentellen Beobachtungen erklären. Insbesondere das Sättigungsverhalten und die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung werden im nächsten Kapitel wieder aufgegriffen.

Ein wesentlicher Punkt, der in dem Modell nicht beinhaltet ist, ist der Dipolcharakter des NV-Zentrums. Das NV-Zentrum besitzt eine Symmetrieachse entlang der Verbindungsline von Stickstoffatom und Fehlstelle. Optische Messungen haben ergeben, dass Dipolübergänge zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand für zwei entartete, orthogonale Dipole erlaubt sind [24], die senkrecht zur Symmetrieachse stehen und in Abbildung 2.4(a) als blaue Pfeile dargestellt sind. Die Anregung eines NV-Zentrums ist deshalb abhängig von der Polarisation des Anregungslasers. Die absorbierte Leistung ist proportional zu dem Skalarprodukt [25]

$$A \propto \left\langle \sum_{i=1}^2 (\mathbf{p}_i \cdot \mathbf{E})^2 \right\rangle \quad (2.31)$$

zwischen der Orientierung der beiden Dipole des NV-Zentrums $\mathbf{p}_{1,2}$ und der Polarisation des elektrischen Feldes \mathbf{E} . Ist die Orientierung des NV-Zentrums in einem Koordinatensystem $\{x', y', z'\}$ durch $\mathbf{p}_1 = \{1, 0, 0\}$ und $\mathbf{p}_2 = \{0, 1, 0\}$ gegeben und die Polarisation des Anregungslaser im Koordinatensystem $\{x, y, z\}_E = \{1, 0, 0\}$ so erhält man aus Gleichung 2.31 mithilfe der in Abbildung 2.7 dargestellten Eulerwinkel α, β und γ

$$A \propto 1 - \sin^2(\alpha)\sin^2(\beta). \quad (2.32)$$

Im linearen Bereich der Sättigungskurve aus Gleichung 2.24 ist die abgestrahlte Intensität $I \propto A$ und Gleichung 2.32 gilt auch für das Abstrahlverhalten. (vgl. [25], [26], [27])

Bisher wurden die allgemeinen Eigenschaften der NV-Fluoreszenz beschrieben. Für die in dieser Arbeit vorgestellten praktischen Anwendungen zeigt sich jedoch, dass NV-Zentren in herkömmlichen, makroskopischen Diamanten nur schwer handhabbar sind. Insbesondere die Kopplung der NV-Fluoreszenz an andere Strukturen wie Wellenleiter ist hier

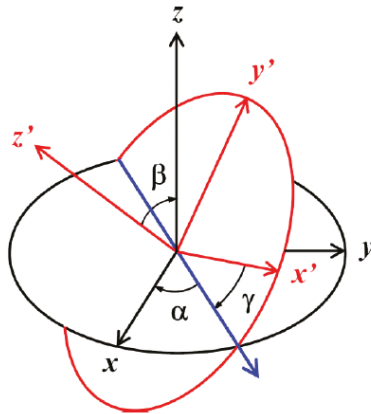


Abbildung 2.7: Eulerwinkel zur Berechnung des Absorptionsverhaltens des NV-Zentrums. Die Dipole $p_{1,2}$ liegen in der x', y' -Ebene und das Anregungslicht ist in x -Richtung polarisiert. Aus [25]

äußerst kompliziert. Zur Kombination von NV-Zentren mit integrierten optischen Systemen ist es hilfreich mit Diamantanokristallen zu arbeiten, die einzelne NV-Zentren enthalten.

2.2.3 Diamantanokristalle

Diamantanokristalle sind Diamanten mit einem Durchmesser, der viel kleiner als die Wellenlänge von Licht ist (i.d.R. $D < 100$ nm). Die Wahrscheinlichkeit einzelne NV-Zentren in unbehandelten Nanokristallen zu finden hängt unter anderem von seinem Durchmesser und der Stickstoffkonzentration ab. Abbildung 2.8 zeigt sowohl die durchschnittliche Anzahl an Diamanten (breite Balken), als auch die Wahrscheinlichkeit, dass sich darin NV-Zentren befinden (schmale Balken), für Diamantanokristalle mit einer Stickstoffkonzentration von 15 ppm [28]. Für Diamanten, deren Durchmesser kleiner als 40 nm ist, ist es eher unwahrscheinlich, dass diese NV-Zentren enthalten. Für Durchmesser größer als 70 nm kann mehr als ein NV-Zentrum pro Diamant vorhanden sein. Daraus resultiert eine optimale Diamantgröße zwischen 40 und 70 nm.

Im wesentlichen entsprechen die optischen Eigenschaften von NV-Zentren in Nanokristallen denen in einem größeren Diamanten, dennoch sind einige Besonderheiten zu berücksichtigen. Durch die Änderung der dielektrischen Umgebung ändern sich die Übergangsraten zwischen elektronischen Zuständen und somit wird die mittlere Lebensdauer τ des strahlenden Niveaus $|2\rangle$ modifiziert. Die in makroskopischem Diamant gemessene Lebensdauer beträgt $\tau_b = 11,6$ ns [9]. Die Rate spontaner Emission Γ ist durch Fermi's goldene Regel bestimmt,

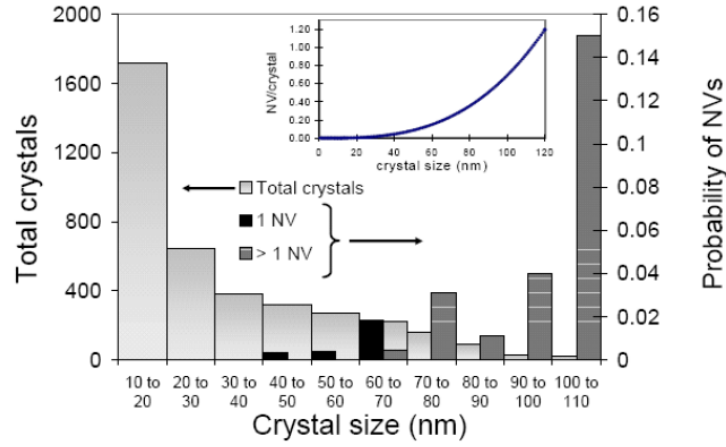


Abbildung 2.8: Verteilung der Anzahl an Diamantanokristallen (breite Balken) und Wahrscheinlichkeit, dass diese NV-Zentren enthalten (schmale Balken) in Abhängigkeit des Diamantdurchmessers. Das Inset zeigt die durchschnittliche Anzahl an NV-Zentren pro Kristall. Die Nanokristalle wurden auf Quarzsubstraten durch *chemical vapor deposition* gewachsen und es wurde auf die Zuführung von zusätzlichem Stickstoff verzichtet. Die Stickstoffkonzentration ist 15 ppm. Aus [28]

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{\pi\omega}{\hbar} \mu^2 \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \left| \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}_{\mathbf{k}, \sigma}(\mathbf{r}) \right|^2 \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}, \sigma}) \quad (2.33)$$

mit der Übergangsfrequenz ω , dem Dipolmatrixelement $\hat{\mu} = \mu \hat{\mathbf{d}}$ und der Summe über alle Photonenmoden (\mathbf{k}, σ) (Wellenvektor, Polarisation). Die Summe in Gleichung 2.33 entspricht der lokalen Zustandsdichte (engl. *local density of states*, LDOS). Im Fall eines Dipols in einem homogenen Medium mit dem Brechungsindex n koppelt dieser an ein Kontinuum von Moden, deren Dichte mit n^3 zunimmt. Die Intensität des elektrischen Feldes hingegen nimmt mit $\frac{1}{n^2}$ ab. Daraus folgt eine lineare Abhängigkeit der Emissionsrate Γ vom Brechungsindex n

$$\Gamma(n) = n\Gamma_0, \quad (2.34)$$

wobei Γ_0 die Emissionsrate des Dipols für $n = 1$ ist. Befindet sich dieser Dipol in einem Nanoteilchen mit Durchmesser $a \ll \lambda$, so wird die Fluoreszenzrate Γ_p unterdrückt, da sich das lokale elektrische Feld ändert. Ein Ansatz hierfür wird in Ref. [29] hergeleitet mit dem Ergebnis

$$\frac{\Gamma_p}{\Gamma_b} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon}} \left(\frac{3}{\epsilon + 2} \right)^2 \approx 0,062 \quad (2.35)$$

mit der *bulk* Emissionsrate Γ_b und der elektrischen Permittivität $\epsilon = n_d^2$.

Da die Nanokristalle im Experiment auf einem Substrat angebracht werden, ist auch die Modifikation der elektrischen Umgebung durch dieses für die Abstrahlcharakteristik wichtig. Für eine genaue Berechnung der Emissionsrate muss explizit die Orientierung des Dipols berücksichtigt werden. Da ein NV-Zentrum nicht als linearer, sondern als zweidimensionaler Dipol betrachtet werden muss, sind die Berechnungen komplex. Eine numerische Auswertung [30] zeigt die zu erwartenden relativen Emissionsraten verglichen mit makroskopischem Diamant und die dazugehörigen Lebensdauern (Abbildung 2.9). Die durchschnittliche Lebensdauer eines NV-Zentrums auf einem Glassubstrat beträgt demnach $24,1 \text{ ns}$ und hat eine breite Streuung von $\Delta\tau = 7,5 \text{ ns}$ (in makroskopischem Diamant ist die Streuung sehr gering). Die Streuung der Verteilung kann dabei mehrere Gründe haben. Neben der unterschiedlichen Dipolorientierung ist auch die Position des NV-Zentrums im Nanokristall, der unterschiedliche Formen haben kann, von Bedeutung.

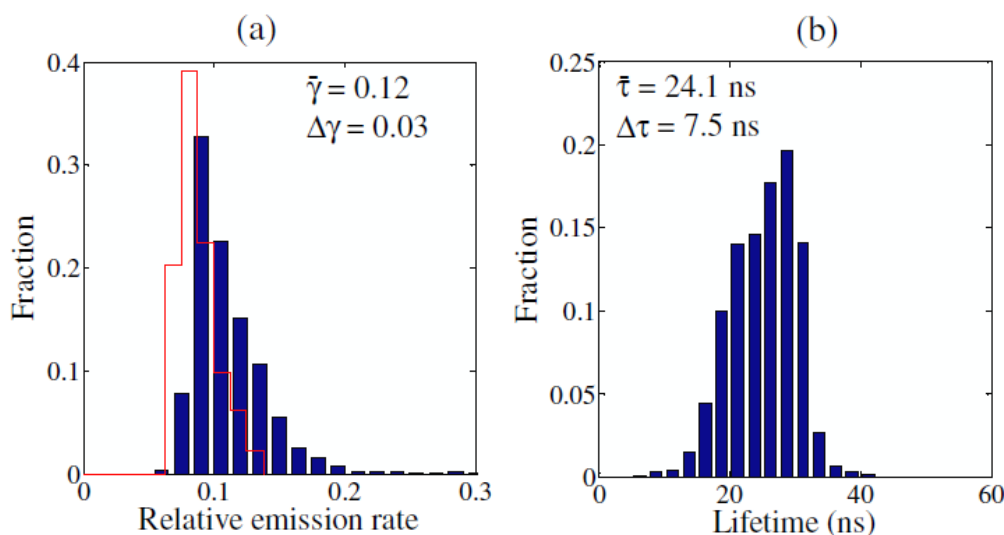


Abbildung 2.9: Streuung der relativen Emissionsrate und der spontanen Lebensdauer eines NV-Zentrums, berechnet mit einer FDTD-Simulation für Nanokristalle auf einem Glassubstrat. Die rote Linie ist die Berechnung mit einem semi-analytischen Modell. Aus [30]

Die vorgestellte Beschreibung der NV-Fluoreszenz, speziell von NV-Zentren in Diamantanokristallen, liefert die Grundlage der Experimente in den nächsten Kapiteln. Dennoch ist sie nur ein kleiner Auszug aus den umfangreichen Eigenschaften der NV-Zentren, von denen z.B. die Aufspaltung unterschiedlicher Spinzustände [31] [32] [33], oder die chemischen Eigenschaften von Diamantanokristallen [34] [35] nicht genauer beschrieben wurde. Einige für die Messungen erforderlichen chemischen Eigenschaften wie Oberflächengruppen der Nanokristalle sind kurz im Anhang A.2 beschrieben.

2.3 Gezogene optische Glasfasern

Um die Effizienz der Einzelphotonenquelle zu erhöhen, kann die Aufsammlung der Fluoreszenz durch die Kopplung der NV-Zentren an einen Wellenleiter erhöht werden. Durch die lokale Zustandsdichte (LDOS) die in diesem Fall nicht mehr aus einem Kontinuum an Zuständen besteht wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben, sondern die bevorzugte Emission von Photonen in geführte Moden des Wellenleiters zur Folge hat, kann die Photonenausbeute deutlich erhöht werden. Dazu muss die Emissionsmode des Photonenemitters einen Überlapp mit der geführten Mode des Wellenleiters haben. In dieser Arbeit werden optische Fasern als Wellenleiter verwendet. Der Modenüberlapp kann dadurch geschehen, dass der Emittor in den Kern einer speziellen Glasfaser (*hollow core fiber*) eingebracht wird [36], oder indem der Photonenemitter auf der Oberfläche einer modifizierten Faser mit sehr kleinem Durchmesser positioniert wird. Ein Beispiel für ein solches System sind gezogene (engl. *tapered*) Glasfasern, die auch Nanofasern genannt werden, da ihr Durchmesser bis zu wenige hundert Nanometer beträgt.

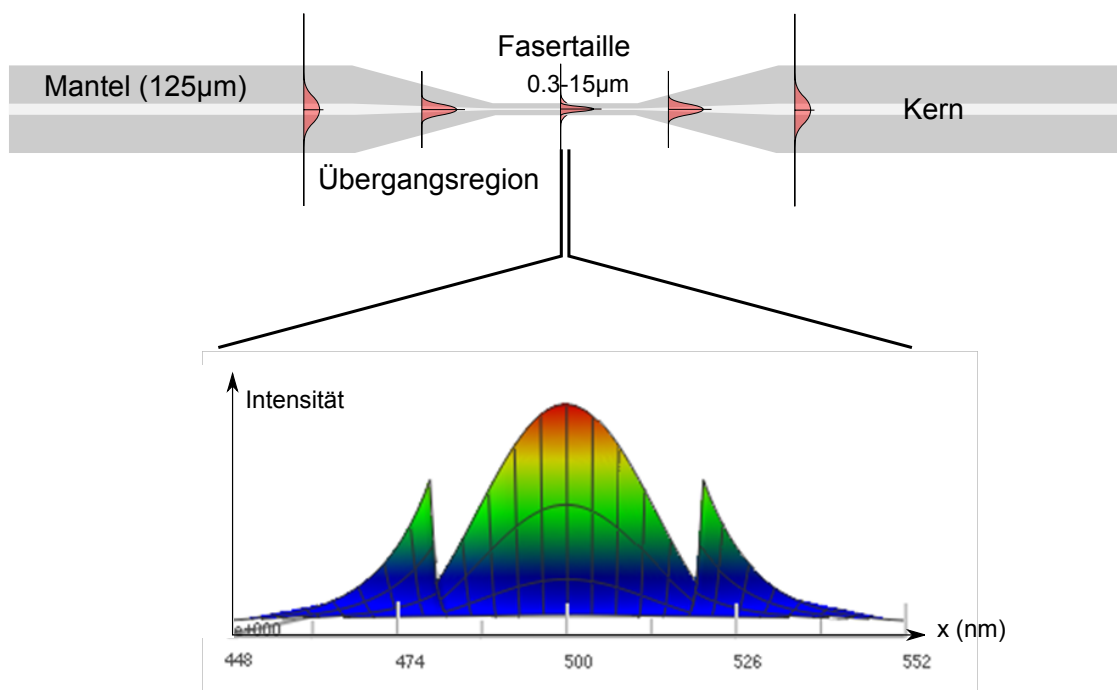


Abbildung 2.10: Schematische Zeichnung einer gezogenen Glasfaser und das Ergebnis einer Simulation des Intensitätsquerschnitts der geführten Mode an der Position des *fiber waist*.

2.3.1 Allgemeine Eigenschaften gezogener Fasern

Eine *getaperte* Glasfaser besteht im wesentlichen aus drei Bereichen, die in Abbildung 2.10 (a) zu sehen sind.

Der äußere Bereich ist eine handelsübliche Glasfaser mit einem Manteldurchmesser von $125\ \mu\text{m}$. Zur Mitte hin schließt die Übergangsregion (engl. *transition region*) an, in der der Faserdurchmesser adiabatisch verringert wird. Der zentrale Bereich, der einen konstanten Durchmesser von wenigen hundert nm bis einigen μm hat, wird als Fasertaille (engl. *fiber waist*) bezeichnet.

Die Produktion solcher Nanofasern geschieht durch Ziehen einer kommerziell erhältlichen *single mode* Glasfaser über einer Flamme mit einer Temperatur die größer ist als die Schmelztemperatur von Glas ($T_s \approx 1200^\circ\text{C}$). Da die optischen Eigenschaften wie Transmission der Nanofaser stark von der Form der Übergangsregion abhängen, ist eine genaue Kontrolle des Produktionsvorgangs notwendig. Die Form ist mithilfe eines einfachen Modells zu berechnen, das in Anhang A.1 vorgestellt wird [37]. Im wesentlichen gibt es drei wichtige Voraussetzungen für die Form der gezogenen Faser. Erstens, um eine gute Kopplungseffizienz zu erreichen muss der *fiber waist* im Submikrometerbereich sein. Zweitens ist für eine hohe Transmission eine adiabatische Übergangsregion nötig und drittens sollte der schmale Bereich nicht zu lang sein, da dieser Abschnitt anfällig für Verluste der geführten Mode durch Streuung ist, die durch Fremdkörper auf der Oberfläche verursacht wird.

2.3.2 Optische Eigenschaften gezogener Fasern

Licht, das sich in den *single mode* Fasern ausbreitet wird in einer Gauß'schen Mode geführt. Die transversale Form dieser Mode wird in dem Übergangsbereich zum *fiber waist* modifiziert. Wenn die Faser einen Durchmesser kleiner als die *cut-off* Wellenlänge erreicht, dringt die Mode in den Mantel ein, bis sie schließlich effektiv durch die Mantel-Luft Grenzschicht geführt wird. Da der Manteldurchmesser anfangs deutlich größer als der Kern einer Einmodenfaser ist, können an dieser Stelle höhere transversale Moden entstehen. Diese höheren Moden werden an der Fasertaille reflektiert oder gestreut, wodurch die Transmission der Faser reduziert wird. Dieses Verhalten kann durch einen adiabatischen Verlauf der Übergangsregion verhindert werden [37]. Wegen der Breite des NV-Spektrums muss die Transmission dabei für den gesamten Spektralbereich ausreichend groß sein. Die verwendeten optischen Nanofasern weisen über einen 100 nm breiten Bereich mehr als 70% Transmission auf [38]. Der Intensitätsquerschnitt der geführten Mode an der Position des *fiber waist* ist in Abbildung 2.11(a) gezeigt.

Innerhalb der Nanofaser propagiert nach wie vor eine geführte Gauß'sche Mode, aber die Ausdehnung ist größer als der Faserdurchmesser. An der Faseroberfläche ist die Intensität nicht stetig wegen des Sprungs im Brechungsindex an der Glas-Luft Grenzschicht. Außerhalb der Faser wird die Leistung in einem evaneszenten Feld geführt, das radial exponentiell abfällt [39]. Der große Anteil des evaneszenten Feldes an der geführten Mode macht die getaperte optische Faser zu einem System, das gut für die effiziente und kontrollierte Kopplung zwischen geführtem Licht und Nanoemittern geeignet ist [40].

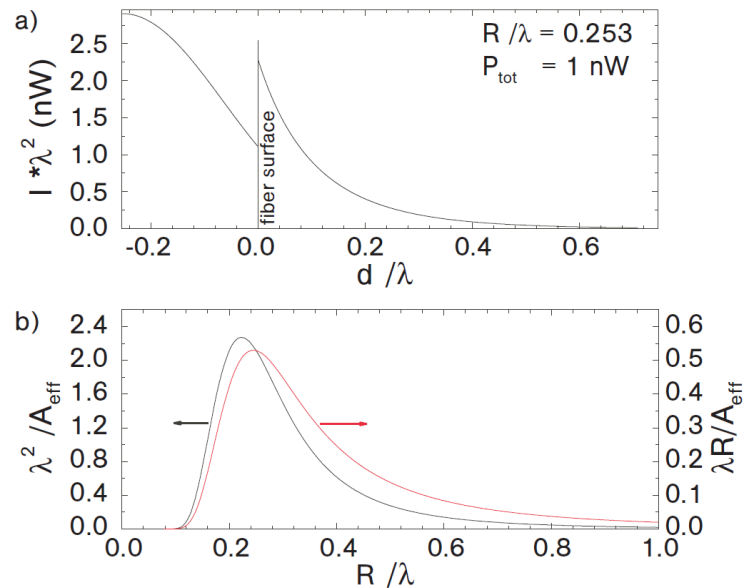


Abbildung 2.11: (a) Intensitätsquerschnitt der geführten Mode an der Fasertaille einer Nanofaser. Ein Teil der Leistung wird in einer evaneszenten Welle geführt. (b) Kopplungseffizienz $\frac{1}{A_{\text{eff}}}$ als Funktion des Faserradius. Kopplung ist im Bereich $r = 0,1\lambda \dots 0,5\lambda$ möglich. Aus [39]

2.3.3 Kopplung zwischen Nanofasern und Partikel auf der Oberfläche

Partikel auf der Oberfläche der Nanofaser können mit dem evaneszenten Feld wechselwirken. Im wesentlichen gibt es drei relevante Arten von Wechselwirkungen. Wenn sich Licht in der Glasfaser ausbreitet, kann dieses mit Streukörpern wechselwirken, oder einen Dipol der sich darauf befindet anregen. Propagiert keine geführte Mode durch die Glasfaser, aber ein angeregter Dipol befindet sich darauf, kann dieser einen Anteil der Photonen in die geführte Mode emittieren. Diese drei Fälle sollen genauer beschrieben werden.

Betrachtet man das Eindringen eines Lichtstrahls in einen Molekülfilm auf einem dielektrischen Substrat [39], so wird ein Teil der Leistung in diesem Film absorbiert. Die Absorption ist proportional zur Oberflächendichte θ , bzw. zur Anzahl der Moleküle N_S im Lichtfeld, und dem Wirkungsquerschnitt der Moleküle $\sigma(\lambda)$. Das ändert sich, wenn sich eine geführte Mode in einer gezogenen Glasfaser ausbreitet und auf der Oberfläche befinden sich N Moleküle, so können diese nur mit dem evaneszenten Feld wechselwirken. Die Absorption ist also proportional zu $\frac{N\sigma(\lambda)}{A_{\text{eff}}}$ mit der effektiven Fläche der geführten Mode, die dem Verhältnis der transmittierten Leistung der Faser zu der Intensität des evaneszenten Feldes entspricht $A_{\text{eff}} = \frac{P}{I_{\text{surf}}}$. Deshalb ist $\frac{1}{A_{\text{eff}}}$ proportional zur Auskopplungseffizienz der Nanofaser. Für Fasern mit dem handelsüblichen *single mode* Mantelradius $r = 125 \mu\text{m}$ ist $\frac{1}{A_{\text{eff}}}$ nahezu 0, da die Intensität des evaneszenten Feldes verschwindend klein ist. Man kann zeigen, dass die Auskopplungseffizienz im Bereich $r = 0,1\lambda \dots 0,5\lambda$ maximal ist, wobei λ die Wellenlänge der geführten Mode ist (vgl. Abbildung 2.11(b)).

Die kleinsten hier verwendeten optischen Fasern haben einen Durchmesser von 300 nm. Die geführte Mode koppelt stark mit Partikel auf der Oberfläche, wodurch die Transmission der optischen Faser bereits bei wenigen Teilchen messbar reduziert wird [39]. Eine zweite Möglichkeit der Wechselwirkung ist, dass das evaneszente Feld zur Anregung eines Dipols auf der Faser verwendet wird. Dazu wird Licht in der Faser geführt, das resonant zu einem Übergang des Dipols ist [41]. Die in dieser Arbeit untersuchte Wechselwirkung zwischen einer *getaperten* Glasfaser und Diamantnanokristallen auf der Oberfläche der Fasertaille mit Radius a entspricht dem umgekehrten Problem. Befindet sich ein bereits angeregter Dipol (z.B. ein durch einen Laserstrahl in den 3E -Zustand angeregtes NV-Zentrum) auf der Nanofaser, so emittiert dieser einen Teil seiner Fluoreszenz in eine geführte Mode der Glasfaser [40]. Zur mathematischen Beschreibung (Geometrie in Abbildung 2.12 (a)) wird die Emissionsrate in einen ungerichteten $\Gamma_{\text{strahlend}}$ und einen geführten Γ_{gefuehrt} Teil zerlegt

$$\Gamma_{\text{total}} = \Gamma_{\text{strahlend}} + \Gamma_{\text{gefuehrt}}. \quad (2.36)$$

Die einzelnen Emissionsraten ergeben sich aus Fermis goldener Regel (Gleichung 2.33). Anders als in Kapitel 2.2.3 beschrieben, besteht die LDOS in diesem Fall nicht aus einem Kontinuum an Moden. Die lokale Zustandsdichte (LDOS) setzt sich aus einem kontinuierlichen Anteil für die ungerichtete Abstrahlung des Dipols $\Gamma_{\text{strahlend}}$ und diskreten Endzuständen für die geführten Moden Γ_{gefuehrt} zusammen. Die elektrische Feldverteilung, die zur Lösung des Problems benötigt wird, folgt aus den Maxwellgleichungen, wobei die Anwesenheit der Nanofaser berücksichtigt werden muss. Die möglichen Endzustände in der Nanofaser sind für $a \ll \lambda$ auf zwei mögliche Moden beschränkt. Neben Überlegungen zu nichtstrahlender Relaxation im Falle eines komplexen Brechungsindex sind insbesondere die Orientierungen der Dipole zu berücksichtigen, die wie in Abbildung 2.12(a) dargestellt entweder radial zur Faser (ρ), tangential zur Faser (ϕ) oder entlang der Faserrachse (z) ausgerichtet sein können. Numerisch berechnete Ergebnisse für die Emissionsraten aller drei möglichen Dipolorientierungen sind in Abbildung 2.12 (b)-(d) als Funktion des Produkts aus Faserradius a und Wellenvektor k dargestellt.

Dabei sind drei Eigenschaften charakteristisch für die Emissionsraten. Erstens ist die strahlende Emissionsrate nicht konstant, zweitens ist die Kopplungseffizienz, die aus der Emissionsrate in die geführte Mode hervorgeht, ähnlich wie $\frac{1}{A_{\text{eff}}}$ (Abbildung 2.11 (b)) in einem schmalen Bereich möglicher Faserradien ausreichend hoch und drittens sind beide Teilemissionsraten abhängig von der Orientierung des Dipols.

Wie bereits in Kapitel 2.2.3 hängt die strahlende Emission stark von der Dipolorientierung und der dielektrischen Umgebung ab, die sich hier mit dem Faserradius ändert. Im Fall von Nanofasern kann das Gesamtsystem aus Dipol und Nanofaser als modifizierter Dipol betrachtet werden, der nun stark vom Faserradius abhängt. Dadurch lassen sich die Änderungen der strahlenden Emissionsrate beschreiben.

Für einen Radius $a \approx 120$ nm ($ka \approx 1, 2$, $\lambda = 637$ nm) ist die Kopplungseffizienz in eine geführte Mode der Nanofaser maximal. Wie bereits beschrieben, zeigt bei diesem

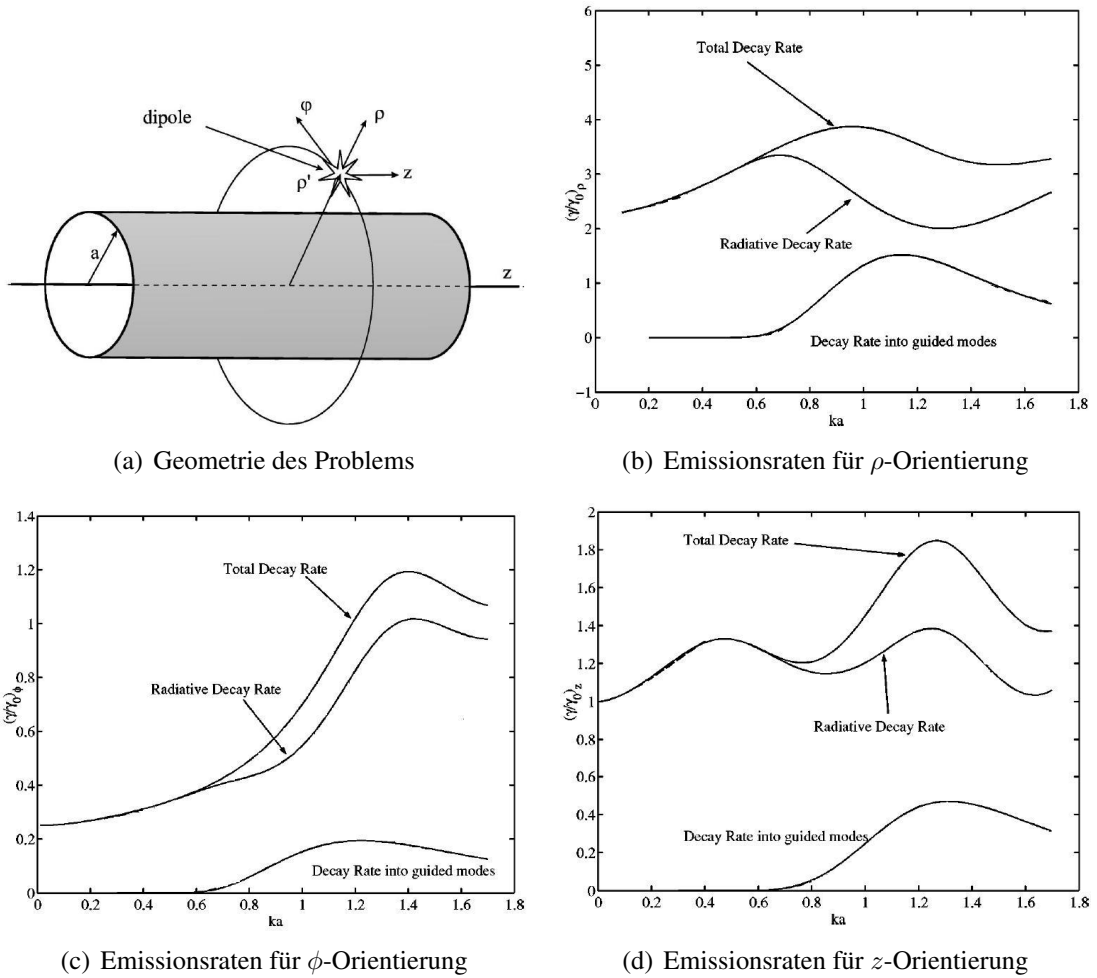


Abbildung 2.12: Relative Emissionsraten eines angeregten Dipols auf einer Nanofaser als Funktion des Faserradius. Für jede Dipolorientierung sind die zwei Teilraten $\Gamma_{\text{strahlend}}$ und Γ_{gefuehrt} sowie die Gesamtrate dargestellt. Aus [40]

Wert die geführte Mode der Nanofaser ein starkes evaneszentes Feld. Die Emissionsmode hat daher einen Überlapp mit der Fasermode und kann somit an die optische Faser koppeln. Die Dipolabhängigkeit ergibt sich aus der Tatsache, dass die Abstrahlcharakteristik eines Dipols räumlich nicht homogen ist. Das beeinflusst den möglichen Überlapp der Moden und damit die relative Emissionsrate.

Um diese Beschreibung auf NV-Zentren anzuwenden, ist vor allem die Existenz der zwei erlaubten Dipolübergänge eines NV-Zentrums zu berücksichtigen. Dennoch ist das Modell in den Grundzügen auch für diesen Fall gültig. Deshalb kann durch die Verwendung von Nanofasern eine NV-basierte Einzelphotonenquelle betrieben werden, die eine deutlich höhere Photonenabgabe verspricht als bei der Aufsammlung der Fluoreszenz mit einem Mikroskopobjektiv.

Kapitel 3

Charakterisierung von Diamantnanokristallen auf einem Glassubstrat

Um die Kopplung von NV-Zentren an Nanofasern zu realisieren, ist zuerst eine Charakterisierung des Probenmaterials nötig. Dazu werden die Diamantnanokristalle zunächst auf ein planares Substrat aufgebracht, da die Präparation in diesem Fall einfacher und die Haftung der Diamanten am Substrat stärker ist. Damit sind stabile Messungen der NV-Fluoreszenz der verwendeten Nanokristalle möglich.

3.1 Herstellung der Proben

Für die Experimente kann zwischen drei unterschiedlichen Arten von Diamantnanokristallen (Nanodiamanten, ND) gewählt werden, die jeweils in einer wässrigen Lösung vorliegen und im folgenden als ND1, ND2 und ND3 bezeichnet werden. ND1 sind unbehandelte Nanodiamanten, die durch das Mahlen größerer Mikrodiamanten entstehen. ND2 entsteht durch eine Oxidation von ND1 mit unterschiedlichen Säuren, wodurch eine homogene chemische Oberflächenstruktur geschaffen wird. ND3 sind ebenfalls oxidierte Diamanten, die nach Beschuss mit hochenergetischen Heliumionen zusätzliche Fehlstellen im Diamantgitter aufweisen und dadurch eine deutlich höhere NV-Konzentration besitzen [42]. Deshalb enthält ein einzelner ND3-Diamant in der Regel mehr als 1 NV-Zentrum. Solche Nanodiamanten werden im folgenden auch als M-NV (multi-NV) bezeichnet.

Die Diamantproben werden auf ein Glassubstrat aufgebracht. Dafür eignet sich Suprasil, das deutlich weniger Eigenfluoreszenz als andere Glassubstrate, wie z.B. Mikroskopdeckgläschen, zeigt, wodurch das Signal-zu-Rausch Verhältnis erhöht und die Detektion von NV-Zentren somit erleichtert wird. Der genaue Herstellungsprozess der

Suprasilproben ist in Anhang A.3 beschrieben. Im wesentlichen wird die Oberfläche des Substrates von organischen Verunreinigungen gesäubert und somit hydrophilisiert. Durch Ultraschallbehandlung werden die in wässriger Lösung vorliegenden Nanokristalle deagglomeriert und durch Zugabe von Polyvinylalkohol (PVA) eine bessere Haftung gewährleistet. Die Lösung wird auf das gereinigte Substrat im *spin coater* aufgeschleudert. Diese Schritte finden im Reinraum statt, damit sich keine Fremdpartikel auf der Probe anlagern. Die Probe wird anschließend an einen dreidimensional einstellbaren Probentisch montiert, der mit Piezos verfahrbar ist.

3.2 Experimenteller Aufbau

Die Messungen zur Charakterisierung der NV-Fluoreszenz erfolgen mit einem Konfokalmikroskop. Derartige Mikroskope stellen ein geeignetes Instrument zur Untersuchung der von in Nanopartikeln eingebetteten NV-Zentren emittierten Fluoreszenz dar. Das Funktionsprinzip unterscheidet sich von gängigen Lichtmikroskopen dadurch, dass ein fokussierter Laserstrahl auf einen Punkt der Probe trifft und somit nur NV-Zentren an dieser Position anregt. Die Fluoreszenz wird mit demselben Objektiv aufgesammelt und eine räumliche Selektion (z.B. durch die Modenselektion beim Einkoppeln des Lichtes in eine Glasfaser) gewährleistet, dass nur Licht von dem angeregten Punkt detektiert wird. Dadurch ist einerseits eine deutlich niedrigere Tiefenschärfe zu erreichen als bei anderen Lichtmikroskopen, aber die Aufnahme liefert kein vollständiges Bild der Probe. Dafür muss die Probe (oder der Anregungsstrahl) gerastert und die Fluoreszenz von jedem Punkt in der Objektebene einzeln gemessen werden. Der Aufbau des verwendeten Konfokalmikroskops mit allen relevanten Komponenten ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Neben dem eigentlichen Mikroskop gibt es je einen separaten Aufbau für den Anregungslaser, das Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer (HBT) und das Spektrometer.

Der zur optischen Anregung der NV-Zentren verwendete Laser ist ein frequenzverdoppelter Nd:YAG Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm. Neben Spiegeln zur Justage und einem Faradayschen Isolator (vgl. [12]), der Rückreflexionen in den Laser vermeidet, sind optische Komponenten zur Leistungs- und Polarisationsänderung des Anregungslasers im Strahlengang angebracht. Dazu wird zunächst eine Kombination aus $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen und einem Polarisator für die Leistungsregelung und ein $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen für die Polarisationskontrolle verwendet. Zur Automatisierung der Messungen befinden sich die $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen auf einem Rotations-Schrittmotor und der Polarisator ist fest auf horizontale Transmission eingestellt. Anschließend wird der Laser in eine optische Einmodenfaser (Typ Thorlabs 460-hp) eingekoppelt, die zum Mikroskop führt. Zum Ausgleich möglicher Polarisationsdrehungen innerhalb der Glasfaser dienen Polarisationskompensatoren, die Leistung und Polarisation des Lasers, am Ausgang der optischen Faser, über lange Zeiträume (länger als eine Woche) stabil halten. Die Kompensation erfolgt in zwei Basen ($|H\rangle = 0^\circ$ und $|+\rangle = 45^\circ$). Das genaue Vorgehen ist in Anhang A.7 zu finden.

Im Konfokalmikroskop wird ein dichroitischer Strahlteiler verwendet, der hochreflektiv

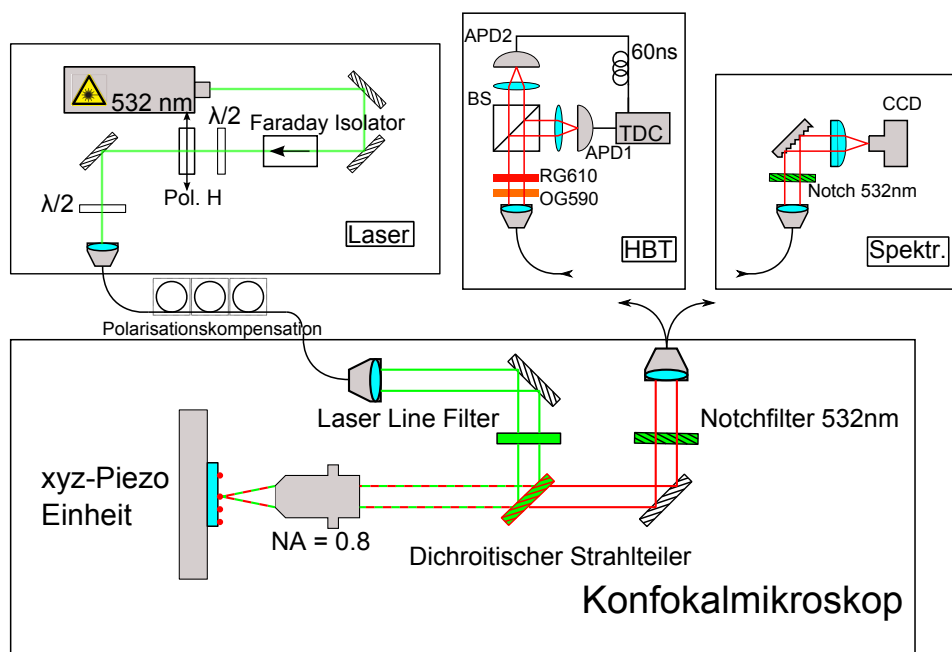


Abbildung 3.1: Aufbau des Experiments. Zur Messung wird ein Konfokalmikroskop verwendet. Die Anregung erfolgt mit einem Nd:YAG Laser (532 nm). Die Detektion ist mit einem HBT-Aufbau oder einem Spektrometer möglich. Details: siehe Text.

für grünes Licht und hochtransmittiv für rotes Licht ist. Dieser lenkt den Anregungslaser auf ein Mikroskopobjektiv mit einer numerischen Apertur $NA = 0,8$, das den Strahl auf die Probe fokussiert. Die Fluoreszenz wird von demselben Objektiv aufgesammelt, anschließend durch den dichroitischen Strahlteiler transmittiert und zur räumlichen Modenselektion in eine Faser eingekoppelt, die zu den Detektoren führt. Dabei kann zwischen zwei Arten von Detektoren gewählt werden. Ein Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer dient zur Messung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung und ein Gitterspektrometer (Details siehe Anhang A.5) zur Aufnahme von Spektren.

Zur groben Untersuchung des Glassubstrates auf NV-Zentren wird die Probe mithilfe des Piezotisches gerastert und für jede Position die Zählrate mit den beiden Avalanche Photodioden (APD) des HBT-Aufbaus gemessen. Dabei ist darauf zu achten, dass die z-Position des Fokus mit der Probenoberfläche übereinstimmt. Ein Scan der Probe A (ND1) ist in Abbildung 3.2 gezeigt. In diesem Bereich befinden sich drei NV-Zentren, die im weiteren als NV1, NV2 und NV3 bezeichnet werden.

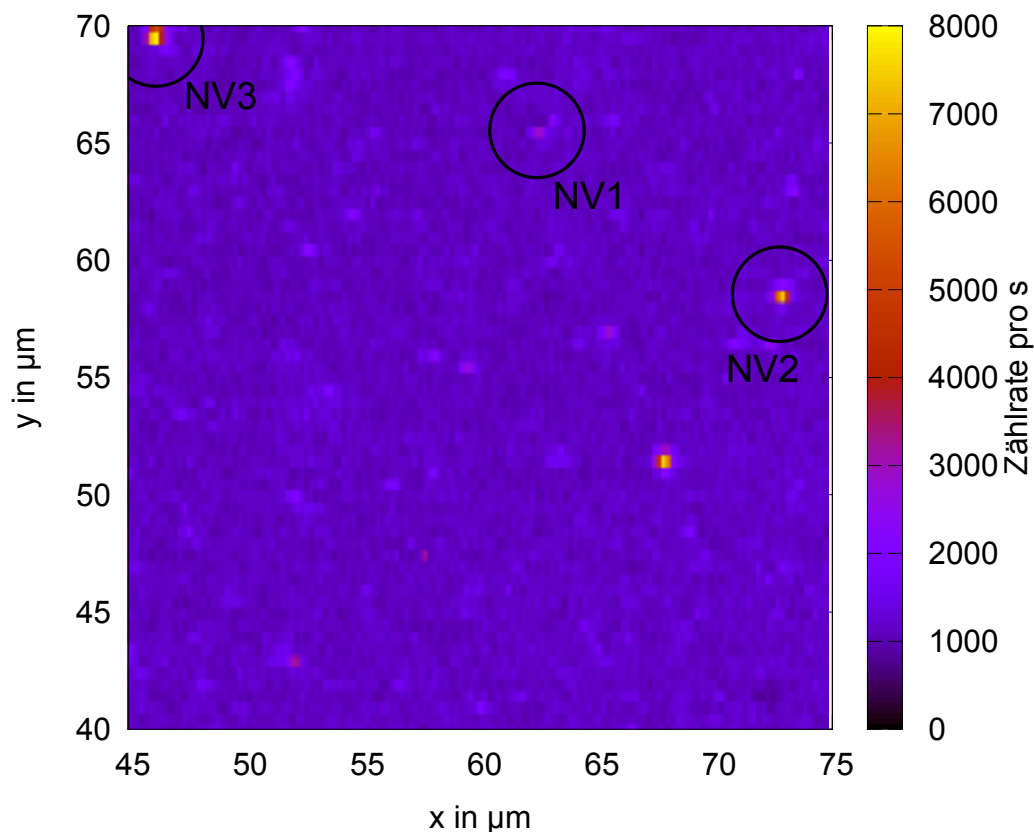


Abbildung 3.2: Scan der Probe A. Das quadratische Scanfeld mit einer Breite von $30\ \mu\text{m}$ wird mit einer Schrittweite von $0.5\ \mu\text{m}$ gerastert. Darin befinden sich drei NV-Zentren.

3.3 Signal-zu-Rausch Verhältnis

Der Aufbau ist ausschlaggebend für die Qualität der Messergebnisse. Im Folgenden sollen zwei Größen, die direkt damit zusammenhängen, genauer untersucht werden: Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (S/N) und das Auflösungsvermögen.

Um das Signal-zu-Rausch Verhältnis zu optimieren ist die Verwendung einiger Filter von Vorteil. Das S/N -Verhältnis lässt sich am einfachsten über die Sättigungskurve eines NV-Zentrums bestimmen, da die NV-Fluoreszenz (Signal) mit steigender Anregungsleistung Sättigung zeigt, während Hintergrundsignale (Rauschen) linear ansteigen. Zur Separation der Beiträge wird die Zählrate eines NV-Zentrums für verschiedene Anregungsleistungen bestimmt und anschließend dieselbe Messung auf einer Hintergrundposition, die neben dem NV-Zentrum liegt, wiederholt. Dabei setzt sich die detektierte Zählrate des NV-Zentrums aus einem Term, der das Sättigungsverhalten (Gleichung 2.24)

$$C_{\text{NV}}(P) = \frac{C_{\text{max}} P}{P_{\text{max}} + P} \quad (3.1)$$

mit der Sättigungszählrate C_{max} beschreibt und dem linearen Term

$$C_{\text{hg}}(P) = mP + c \quad (3.2)$$

zusammen. Die Konstante c hängt von der Dunkelzählrate der APDs und vom Raumlicht ab, das unabhängig vom Anregungslaser vorhanden ist. Der lineare Term mP kann entweder direkt Laserlicht sein, das durch Reflexionen des Anregungslasers auf der Probe zu den APDs gelangt oder vom Laser angeregte Fluoreszenz des Substrates.

Um Reflexionen des Lasers auf der Probe im Signal zu unterdrücken werden Notch-Filter verwendet, die in einem schmalen Wellenlängenbereich (Bandbreite 17nm) um 532 nm Licht reflektieren. Der erzielte Effekt ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Abbildung 3.3(a) (ohne Notchfilter) und Abbildung 3.3(c) (mit Notchfilter) zeigen das Sättigungsverhalten eines NV-Zentrums NV4 (auf Probe A, aber anderer Scanbereich als Abbildung 3.2) und den gemessenen Hintergrund. Letzterer wird von der Fluoreszenz abgezogen. Das Signal-zu-Rausch Verhältnis ermittelt man mit

$$S/N(P) = \frac{(C_{\text{NV}}(P) + C_{\text{hg}}(P))_{\text{gemessen}} - C_{\text{hg}}(P)}{C_{\text{hg}}(P)}. \quad (3.3)$$

Durch den Einbau des Notchfilters steigt das S/N -Verhältnis von 4 auf 11.

Eine weitere Hintergrundquelle ist die Fluoreszenz des Substrates. Im Bereich der NV-Fluoreszenz kann diese nicht gefiltert werden, aber durch die Verwendung eines OG590 und eines RG610 Langpassfilters lassen sich hochfrequente Anteile abschneiden. Außerdem entsteht Fluoreszenz, wenn der Anregungslaser durch eine Faser geführt wird.

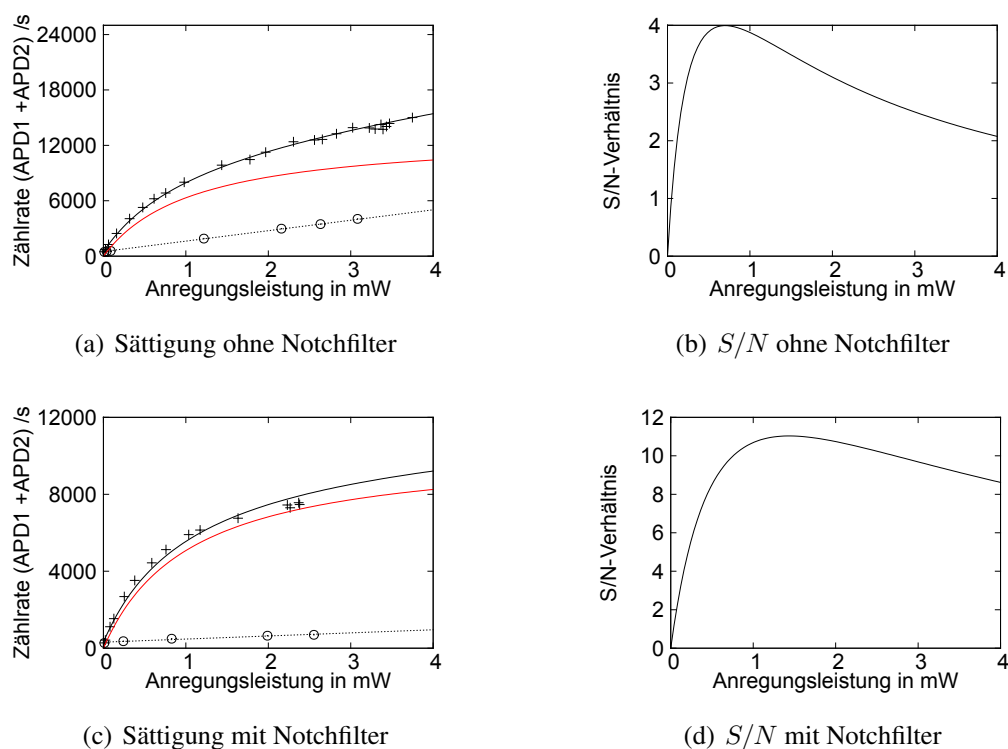


Abbildung 3.3: Sättigungskurven und Signal-zu-Rausch-Verhältnis des NV-Zentrums NV4. Die schwarzen Linien zeigen die Fitfunktionen der gemessenenen Zählraten von Zentrum und Hintergrund (gestrichelt), die rote Linie ist das hintergrundkorrigierte Sättigungsverhalten. Das maximale S/N -Verhältnis steigt durch die Verwendung eines Notchfilters von 4 auf 11.

Messungen zeigen, dass ein bedeutender Anteil dieser Faserfluoreszenz im selben Wellenlängenbereich liegt wie die des NV-Zentrums. Durch Reflexion auf der Oberfläche des Substrates könnte dies eine weitere Hintergrundquelle sein. Eine Messung mit einem Spiegel zwischen dem dichroitischen Strahlteiler und dem Objektiv hat jedoch ergeben, dass dieser Beitrag sehr gering ist, da der rote Anteil bereits vorher den Dichroit passiert hat und nicht mehr im Strahlengang enthalten ist. Trotzdem ist die Verwendung eines Laserline Filters nach der Glasfaser ratsam, um ungewünschte Faserfluoreszenz zu unterdrücken.

3.4 Auflösungsvermögen

Auf einer identisch hergestellten Probe B (erneut ND1) wurde ein NV-Zentrum NV5 identifiziert, an dem das Auflösungsvermögen des Mikroskops experimentell bestimmt werden soll.

Für beugungsbegrenzte Abbildungsoptiken wie dem Konfokalmikroskop wird die

Auflösung in der Regel über das Rayleigh-Kriterium bestimmt. Dieses sagt aus, dass zwei punktförmige Objekte dann zu trennen sind, wenn ihr Abstand d_{\min} mindestens dem Abstand zwischen dem Maximum und dem ersten Beugungsminimum der Airy-Scheibe entspricht. Für Mikroskopobjektive lässt sich dieser Abstand abschätzen als

$$d_{\min} = \frac{0,61\lambda}{NA}. \quad (3.4)$$

Konfokalmikroskope regen die Probe punktweise an und detektieren vom selben Punkt die Fluoreszenz. Dadurch verbessert sich die Auflösung, weil Emitter außerhalb des Fokus schwächer angeregt und die Photonen zusätzlich von dem räumlichen Filter ausgeblendet werden. Deshalb wird das Rayleigh-Kriterium [43] zu

$$d_{\min,\text{konfokal}} = \frac{0,4\lambda}{NA} = 266\text{nm}, \quad (3.5)$$

wobei der berechnete Wert für die im Experiment verwendeten Größen ($\lambda = 532\text{nm}$, $NA = 0,8$) gilt. Das Rayleigh Kriterium liefert also eine theoretische Abschätzung für das Auflösungsvermögen, jedoch ist eine experimentelle Messung mit diesem Konzept schwer zu realisieren. Eine ähnliche Formulierung erhält man über die Punktbildfunktion (engl. *point spread function*, PSF). Diese beschreibt die Antwort bei Anregung eines punktförmigen Objekts. Die Auflösung definiert sich in der Regel als volle Breite bei halber Höhe (FWHM) des Maximums der PSF. Da NV-Zentren von dem idealen punktförmigen Teilchen v.a. durch ihren Dipolcharakter abweichen, kann die PSF damit nicht eindeutig gemessen werden. Dennoch lässt sich das auf NV-Zentren beschränkte Auflösungsvermögen des Konfokalmikroskops über die Form des Zählratenverlaufs $C(x, y, z) = C(r)$ auf analoge Weise bestimmen.

Die laterale (x, y) und axiale (z) Form von $C(r)$ ergibt sich aus der Faltung des NV-Zentrums mit dem Intensitätsprofil des Anregungslasers im Fokus. Dieses lässt sich über die Gaußsche Strahlenoptik herleiten, in der Laserstrahlen als ebene Wellen im Nahfeld und Kugelwellen im Fernfeld beschrieben werden [44]. Daraus erhält man die Intensitätsverteilung im Laserfokus

$$I(x, y, z) = I_0 \left(\frac{W_0}{W(z)} \right)^2 e^{-\frac{2(x+y)^2}{W^2(z)}}, \quad (3.6)$$

mit dem Strahlradius $W(z) = W_0 \sqrt{1 + \frac{z}{z_R}}$, dem Strahlradius im Fokus W_0 und der Rayleigh-Länge z_R . Die Form des Zählratenverlaufs kann analog geschrieben werden als

$$C(x, y, z) = C_0 \left(\frac{W_0}{W(z)} \right)^2 e^{-\frac{2(x+y)^2}{W^2(z)}}. \quad (3.7)$$

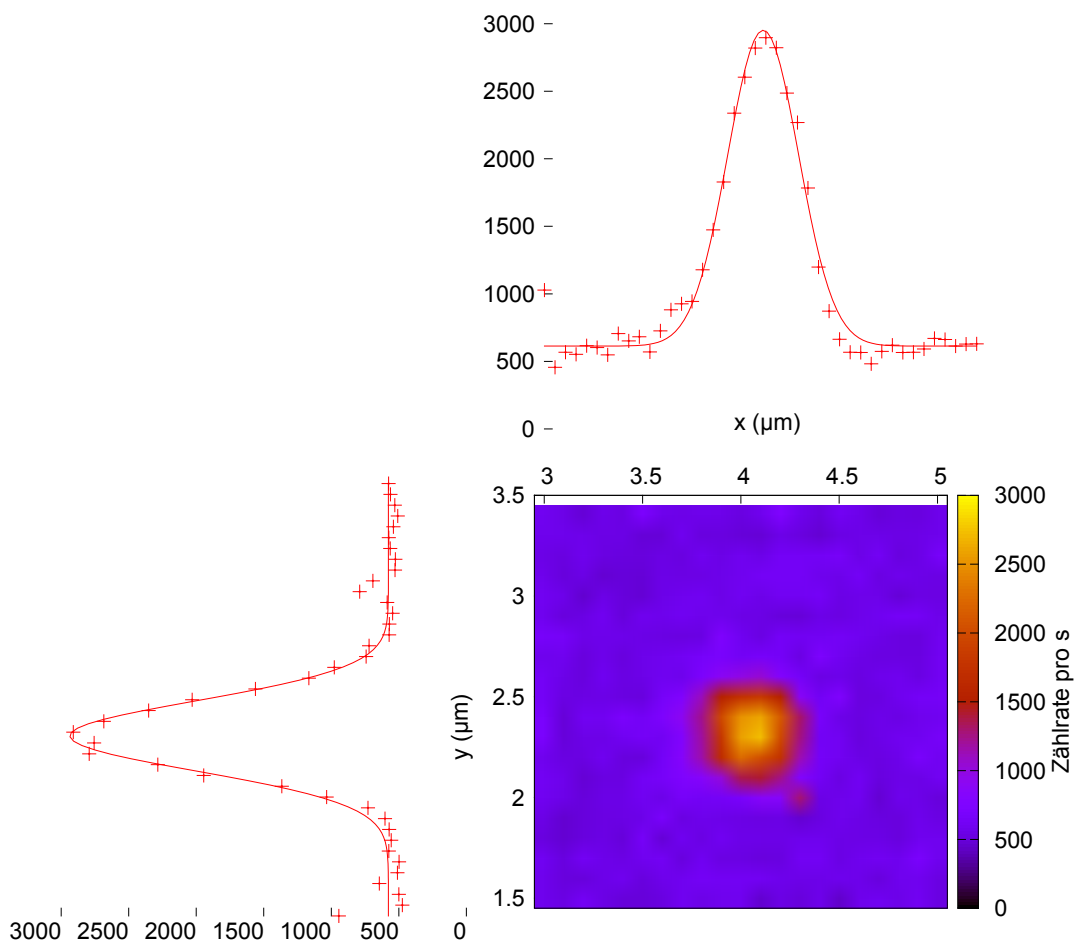


Abbildung 3.4: xy-Scan eines NV-Zentrums mit x- und y-Querschnitt. Als Fit wird ein Gaußscher Strahl verwendet. Daraus lässt sich das Auflösungsvermögen des Konfokalmikroskops experimentell bestimmen.

Zur Messung des Auflösungsvermögens wird ein x-y-Scan mit einer Schrittweite von 100 nm aufgenommen und anschließend an der maximalen y-Position ein x-Scan sowie an der maximalen x Position ein y-Scan durchgeführt (Abbildung 3.4). Für die longitudinale Form des Fokus wird außerdem die z-Position gescannt. Zur Auswertung der Messdaten werden jeweils 2 Koordinaten von Gleichung 3.7 gleich null gesetzt und die detektierten Zählraten der einzelnen Scans mit den Funktionen

x-Scan

$$C(x) = C_0 e^{-\frac{2(x-x_0)^2}{W_0^2}} \quad (3.8)$$

y-Scan

$$C(y) = C_0 e^{-\frac{2(y-y_0)^2}{W_0^2}} \quad (3.9)$$

z-Scan

$$C(z) = C_0 \frac{1}{1 + \left(\frac{z-z_0}{z_R}\right)^2} \quad (3.10)$$

gefittet. Für den x-Scan erhält man $W_0 = 335,6 \pm 10$ nm und für den y-Scan $W_0 = 323,0 \pm 10$ nm. Beide Werte stimmen im Rahmen der Messgenauigkeit überein und der experimentelle Wert ist nur geringfügig größer als der theoretische (Gleichung 3.5). Das liegt an kleinen Abweichungen in beiden Modellen und der nicht berücksichtigten Faltung der PSF mit dem NV-Zentrum. Das Ergebnis lässt sich zusätzlich mit dem z-Scan überprüfen, durch den die Rayleigh-Länge $z_R = 565,2 \pm 14$ nm bestimmt wird. Mit der Beziehung

$$z_R = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \quad (3.11)$$

erhält man aus dem z-Scan den Wert $W_0 = 309,4$ nm. Die Anregungsleistung bei den Messungen ist 0,5 mW und somit kleiner als die Sättigungsleistung. Bei höheren Laserintensitäten tritt eine Sättigungsverbreiterung der Scanbilder auf.

3.5 NV-Spektren und Einzelphotonenstatistik

Nach erfolgter Justage des Mikroskops können die NV-Zentren genauer untersucht werden. Dazu sollen im Folgenden die wichtigsten Eigenschaften aus Kapitel 2.2 (Spektrum, $g^{(2)}$ -Funktion, Polarisationsabhängigkeit, Anregungsleistungsabhängigkeit, spontane Lebensdauer) gemessen und bestätigt werden.

Neben NV-Zentren befinden sich auf der Probe gelegentlich auch andere Partikel die Fluoreszenz zeigen. Das können Staubpartikel aus der Luft oder Verunreinigungen im

Lösungsmittel sein. Außerdem ist stets die Möglichkeit gegeben, dass sich in einem Nanokristall mehrere NV-Zentren befinden oder mehrere Diamantanokristalle agglomerieren und somit innerhalb des Laserfokus mehrere Zentren gleichzeitig angeregt werden. Zur eindeutigen Identifikation einzelner NV-Zentren sind deshalb zwei Schritte notwendig. Die Aufnahme eines Spektrums und der Nachweis der Einzelphotonenstatistik.

NV-Zentren zeigen ein charakteristisches Spektrum mit einer *zero phonon line* und markanten phononischen Bändern. Allerdings sind die Linien bei Raumtemperatur stark verbreitert und die Wahrscheinlichkeitsverteilung (aus den Franck-Condon-Faktoren) für die vibronischen Zielzustände ist abhängig von Gitterverspannungen des Kristalls [23], was dazu führt, dass in Nanokristallen die ZPL eines einzelnen NV-Zentrums in vielen Fällen nicht oder kaum sichtbar ist. Eine weitere Konsequenz der Unordnung im Kristallgitter ist, dass die Linien der Dipolübergänge durch den Stark-Effekt um einige *nm* verschoben sein können.

Bei der Aufnahme von Spektren mit dem Gitterspektrometer ist darauf zu achten, dass die Einkopplung des mehr als 100 nm breiten NV-Spektrums in die Faser mit einer achromatischen Linse, für unterschiedliche Wellenlängen gleiche Kopplungseffizienz hat. Abbildung 3.5 zeigt die Spektren der NV-Zentren NV1 und NV2 von Probe A, die mit einer Belichtungszeit von 4,9 s und einer digitalen Verstärkung von 1000 aufgenommen wurden, wobei jeweils über 100 Spektren gemittelt wird. Der in einer separaten Messung bestimmte Hintergrund wird von den Daten abgezogen. Wie festzustellen ist, ist die ZPL nicht sichtbar. Dennoch sprechen die ausgeprägten phononischen Bänder eindeutig für NV-Fluoreszenz.

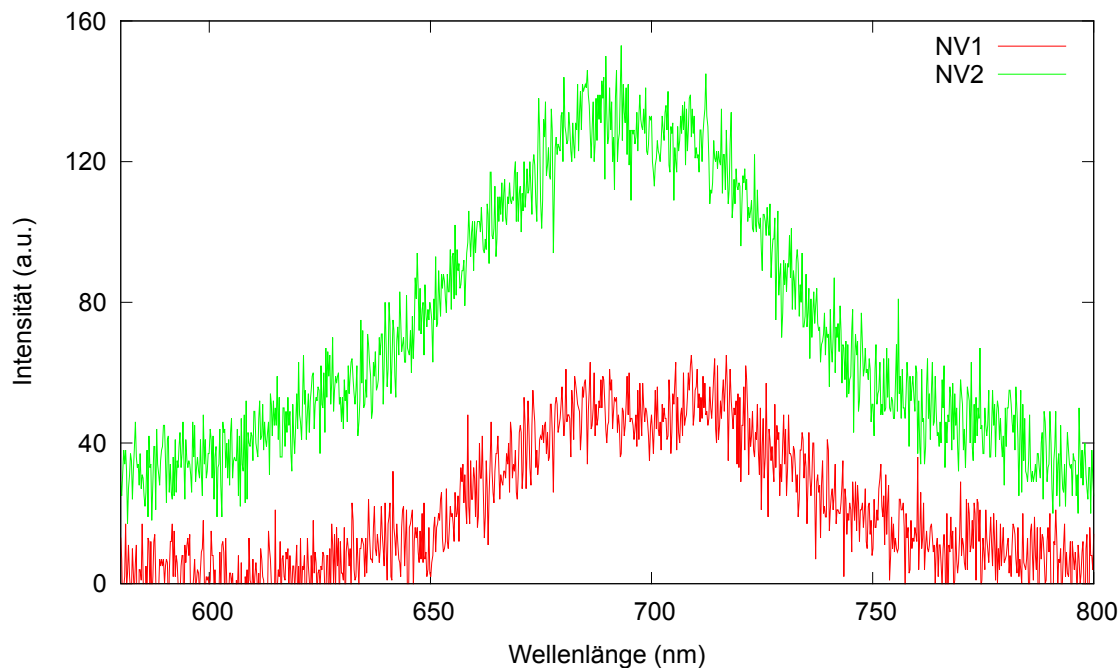


Abbildung 3.5: Hintergrundkorrigiertes Spektrum von NV1 und NV2. Die Belichtungszeit ist 4,9 s, der digitale *gain* 1000 und es wird über 100 Messungen gemittelt

Durch die Aufnahme des Spektrums kann die Art der Photonenquelle zuverlässig bestimmt werden. Dennoch ist für unsere Anwendungen nicht nur der Nachweis von NV-Fluoreszenz wichtig, sondern auch eine explizite Aussage über die Anzahl angeregter NV-Zentren, die über die $g^{(2)}$ -Funktion zu ermitteln ist. Zur Bestimmung der Intensitätskorrelationsfunktion verwendet man das Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer (vgl. Kapitel 2.1.3). Im Strahlteiler werden die Photonen mit einer Wahrscheinlichkeit von 50% abgelenkt und beide Ausgänge führen zu einer APD. APD1 liefert dabei ein Startsignal und APD2 ein um 60 ns verzögertes Stoppsignal. Daraus wird aus zwei aufeinanderfolgenden Detektionen mithilfe einer Elektronik (*time-to-digital converter*, TDC) die Zeitdifferenz berechnet und ein Häufigkeitsdiagramm aufgenommen. Die Zeitverzögerung von APD2 dient dabei zur Umgehung der Totzeit der Elektronik. Deshalb ist für Einzelphotonenemission *Antibunching* an der Position $\tau = 60$ ns zu erwarten.

Um mechanische Instabilitäten im Aufbau auszugleichen, die eine Verschiebung der Position des NV-Zentrums relativ zum Fokus zur Folge haben, wird die Photonenstatistik nur 20 Minuten aufgenommen, anschließend die x-,y- und z-Position des NV-Zentrums durch Scans optimiert und eine neue Statistik über 20 Minuten aufgenommen. Insgesamt werden so etwa 10-30 Zyklen gemessen. Um die Normierung und die Hintergrundkorrektur durchführen zu können wird alle 2 Minuten die Zählrate mit beiden APDs protokolliert (C_1, C_2) und vor jedem Zyklus die Hintergrundzählrate C_{hg} gemessen. Das Histogramm besteht aus Einträgen mit einer *bin*-Breite von $\Delta\tau = 0,6$ ns. Jeder Eintrag enthält die Anzahl detektierter Korrelationen $k(\tau)$ im Zeitintervall $[\tau, \tau + \Delta\tau]$. Die Gesamtzeit der Messung ist T .

Zur weiteren Verwendung ist eine Bearbeitung der Rohdaten notwendig. Analog zu Ref. [10] werden dafür zunächst die Korrelationen $k(\tau)$ der einzelnen HBT-Messungen addiert und das Ergebnis auf eine Poisson-verteilte Strahlungsquelle ($g^{(2)}(\infty) = 1$) mit dem Korrekturfaktor

$$K(\tau) = \frac{k(\tau)}{C_1 C_2 \Delta\tau T} \quad (3.12)$$

normiert. Anschließend wird die Korrelationsfunktion auf durch Hintergrundphotonen verursachte Ereignisse korrigiert. Aus den gemessenen Zählraten C_1 und C_2 und den Hintergrundzählraten $C_{\text{hg},1} = h_1$ und $C_{\text{hg},2} = h_2$ wird die Zählrate der NV-Fluoreszenz berechnet ($s_1 = C_1 - h_1, s_2 = C_2 - h_2$) und die Korrelationsfunktion mit der Transformation

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{1}{s_1 s_2} (C_1 C_2 K(\tau) - h_1 h_2 - h_1 s_2 - s_1 h_2) \quad (3.13)$$

korrigiert [45].

Der Zählratenverlauf einer HBT-Messung an NV3 ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Sprünge im Zählratenverlauf sind meistens an den Zeitpunkten zu beobachten an denen

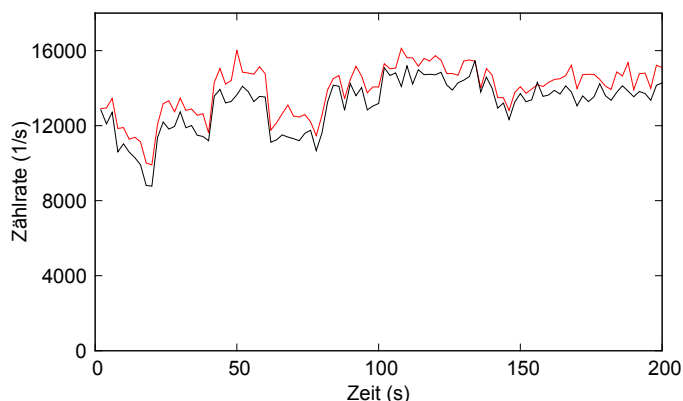


Abbildung 3.6: Zählratenverlauf während einer HBT-Messung. Beide APDs sind getrennt dargestellt.

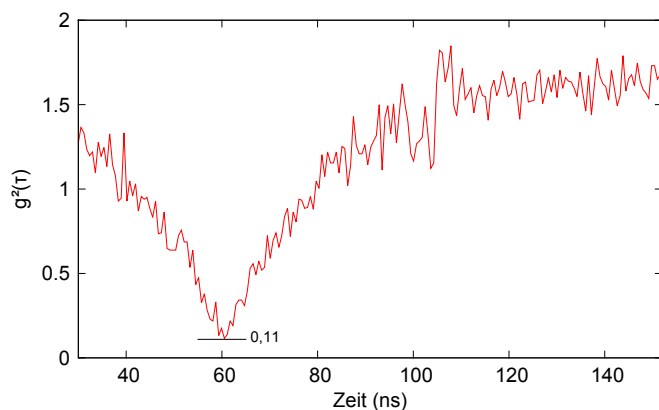


Abbildung 3.7: Gemessene Korrelationsfunktion zweiter Ordnung eines einzelnen NV-Zentrums. Die Messdaten sind normiert und bezüglich des Hintergrundes korrigiert. Die Störungen bei $\tau = 40$ ns und $\tau = 100$ ns werden durch elektrische Reflexionen in den Kabeln zur Elektronik (TDC) verursacht.

die Optimierung stattfand. Außerdem ist zwischen den Optimierungsphasen gelegentlich ein Abfall der Zählrate zu beobachten. Dieser hängt mit einer relativen Bewegung zwischen Fokus und NV-Zentrum zusammen, durch die die Anregungsintensität effektiv geändert wird. Für ein qualitatives Ergebnis ist eine Variation der Anregungsintensität während der Messung nicht relevant, jedoch wird später gezeigt, dass quantitative Größen, die aus der Messung gewonnen werden dadurch Fehler erhalten. Die normierte und hintergrundkorrigierte Intensitätskorrelationsfunktion von NV3 ist in Abbildung 3.7 dargestellt.

Die Tiefe des *Antibunching Dip* enthält Informationen über die Anzahl angeregter NV-Zentren. Während die Wahrscheinlichkeit, dass ein einzelnes NV-Zentrum zwei Photonen gleichzeitig emittiert gleich 0 ist, ist die Korrelation von Photonen für N unabhängige NV-Zentren

$$g^{(2)}(60 \text{ ns}) = 1 - \frac{1}{N}. \quad (3.14)$$

Für die experimentellen Ergebnisse bedeutet das, dass der *Antibunching Dip* für zwei NV-Zentren nie unter $g^{(2)}(60 \text{ ns}) = 0,5$ liegt. Im Fall der gemessenen Korrelationsfunktion von NV3 erreicht er einen minimalen Wert von $g^{(2)}(60 \text{ ns}) = 0,11$. Deshalb handelt es sich um ein einzelnes angeregtes NV-Zentrum. Die Abweichung vom Idealfall $g^{(2)}(60 \text{ ns}) = 0$ ist durch die endliche Breite $\Delta\tau$ der Einträge, das Rauschen und systematische Fehler bei der Hintergrundkorrektur bestimmt. Entsprechende Ergebnisse erhält man bei NV1 und NV2.

Eine andere Art untersuchter Diamantnanokristalle (ND3) unterscheidet sich stark von den bisher erwähnten. Sie haben eine deutlich höhere NV-Konzentration und jeder Nanokristall enthält im Durchschnitt mehrere NV-Zentren (M-NV-Kristalle). Analog zu NV3 wird für ein M-NV-Zentrum (M-NV1) auf der Probe C eine Korrelationsfunktion zweiter Ordnung gemessen, die in Abbildung 3.8 dargestellt ist. Der minimale Funktionswert ist 0,9. Aus Gleichung 3.14 folgt, dass weniger als 10 NV-Zentren angeregt wurden. Allerdings sind in diesem Bereich die Werte für g_N und g_{N+1} sehr ähnlich und eine genaue Aussage ist durch das Rauschen nicht möglich.

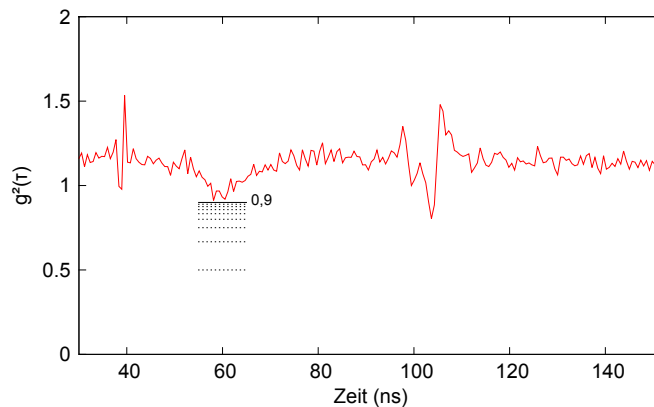


Abbildung 3.8: Gemessene Korrelationsfunktion zweiter Ordnung mehrerer NV-Zentren (M-NV1). Die Messdaten wurden normiert und bezüglich des Hintergrundes korrigiert. Die eingezeichneten Linien deuten die theoretische Tiefe des *Antibunching Dips* für N NV-Zentren an.

Durch Aufnahme eines Spektrums und einer $g^{(2)}$ -Funktion können also einzelne NV-Zentren identifiziert werden. Im Weiteren werden die Eigenschaften untersucht, die auch hinsichtlich der Kopplung an Nanofasern relevant sind.

3.6 Polarisations- und leistungsabhängige Messungen

Wie bereits in Kapitel 2.2.3 und Kapitel 2.3.3 beschrieben, ist ein wesentliches Kriterium für die Abstrahlcharakteristik und die Kopplungseffizienz an optische Fasern die Orientierung der Dipole im NV-Zentrum. Zum Nachweis des Dipolverhaltens werden die Zählraten der drei NV-Zentren NV1, NV2 und NV3 für unterschiedliche lineare Anregungspolarisationen durch Rotation des $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchens gemessen. Dabei muss sichergestellt sein, dass alle Effekte ausschließlich der Polarisation zuzuschreiben sind. Deshalb befindet sich die $\frac{\lambda}{2}$ -Platte vor der Fasereinkopplung. Im Konfokalmikroskop könnte ein Keil im Plättchen bei Rotation den Strahlüberlapp der Anregungs- und Detektionsoptik variieren und dadurch unterschiedliche Zählraten gemessen werden. Durch die Fasereinkopplung ist der Strahlüberlapp unverändert, allerdings kann die in die Faser eingekoppelte Laserleistung variieren. Deshalb ist regelmäßig die Anregungsleistung vor dem Objektiv für unterschiedliche Polarisationsstellungen zu überprüfen. Wie in Anhang A.7 beschrieben wird die Polarisationsänderung durch Glasfaser und Spiegel vor der Messung minimiert. Die drei NV-Zentren werden zuerst durch Aufnahme eines Spektrums und einer HBT-Messung eindeutig als einzelne NV-Zentren identifiziert (Kapitel 3.5).

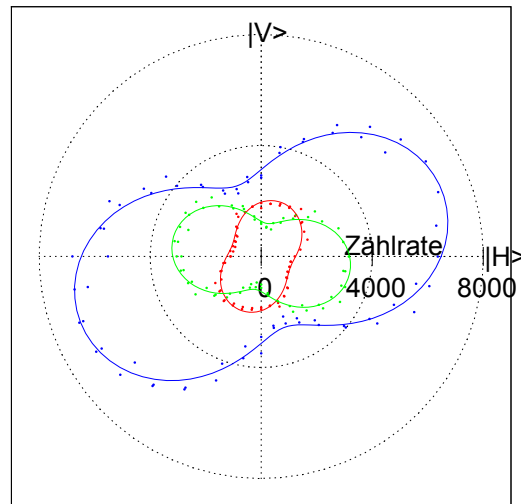
Die Messung erfolgt, indem man die Zählrate für jede Polarisation über 1 s integriert. Das $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen wird in 5° -Schritten von 0° bis 360° gedreht. Dies entspricht also einer 720° -Drehung der Anregungspolarisation und es liegen für jede Position 2 Messwerte vor. Dadurch kann kontrolliert werden, ob die Zählraten durch eine lineare Verschiebung des NV-Zentrums im Fokus im Verlauf der Messung abnehmen. Zusätzlich wird für jeden Schritt auch die Hintergrundzählrate an einer Position neben dem NV-Zentrum gemessen und von den Werten, die an der Position des NV-Zentrums gemessen wurden, abgezogen. Die Anregungsleistung für NV1 und NV2 beträgt 0,5 mW. Da NV3 eine deutlich höhere Zählrate als die anderen Zentren aufweist, konnte eine rauscharme Messung bei 0,1 mW durchgeführt werden, um sicherzustellen, dass keine Sättigungseffekte eintreten. Zum Vergleich der unterschiedlichen NV-Zentren wird die Zählrate von NV3 mit dem Faktor 5 multipliziert. Die Messwerte sind in Abbildung 3.9(a) in einem Polarplot dargestellt. Die radiale Achse entspricht dabei der Zählrate pro Sekunde und die Winkel entsprechen der Anregungspolarisation. Dabei stehen $|H\rangle$ für horizontale und $|V\rangle$ für vertikale Polarisation.

Die Absorption A eines Dipols \mathbf{p} ist $\propto |\mathbf{E} \cdot \mathbf{p}|^2 \propto \cos^2(\phi - \phi_0)$ mit ϕ als Winkel der linearen Anregungspolarisation und ϕ_0 als Winkel zwischen der Projektion des Dipols auf die x-y Ebene und horizontaler Polarisation. Im linearen Bereich der Sättigungskurve ist die Absorption außerdem proportional zur Emissionsrate und damit lassen sich die gemessenen Zählraten allgemein mit der Funktion

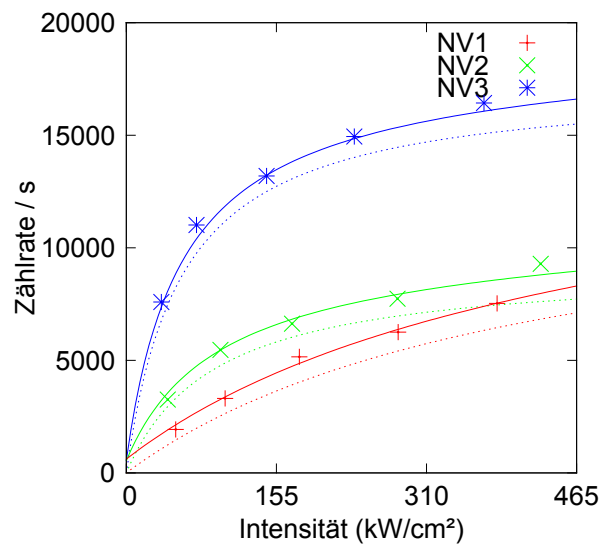
$$A(\phi) = A_1 \cos^2(\phi - \phi_1) + A_2 \cos^2(\phi - \phi_2) \quad (3.15)$$

$$C(\phi) = C_1 \cos^2(\phi - \phi_1) + C_2 \cos^2(\phi - \phi_2) \quad (3.16)$$

für zwei Dipole beschreiben, ohne die Bedingung der Orthogonalität vorrauszusetzen. Die



(a) Polarisation



(b) Sättigung

Abbildung 3.9: Polarisations- und Sättigungsmessung einzelner NV-Zentren. (a) Polardarstellung der Messwerte und Fitfunktionen für drei unterschiedliche NV-Zentren. (b) Sättigungskurven der drei NV-Zentren.

in Abbildung 3.9(a) eingezeichneten Punkte sind die Messwerte und die durchgezogenen Linien die Fitfunktionen $C(\phi)$.

In einer Polardarstellung ergibt sich eine hantelförmige Funktion, die gut mit den Messwerten übereinstimmt. Jeder einzelne Dipol hat dabei die Form einer „8“. Ein Grenzfall tritt ein, wenn die Ebene der beiden Dipole parallel zur Ausbreitungsrichtung (entlang der z-Achse) des Anregungslasers ist und eine der Konstanten $C_i = 0$ ist. Der andere Extremfall ist eine senkrechte Ausrichtung der Dipolebene zum Anregungslaser. In diesem Fall ist die Zählrate unabhängig von der Anregungspolarisation $C(\phi) = konst.$ Allgemein besteht ein Zusammenhang zwischen der Modulationstiefe der Messwerte und dem Winkel zwischen der Dipolebene und der z-Achse.

Es ist zu beobachten, dass die Dipole unterschiedlich orientiert sind. Das ist naheliegend, da sie sich in unterschiedlichen Diamantanokristallen befinden, die zufällig orientiert sind und keinen Einfluss aufeinander haben. In makroskopischen Diamanten hingegen gibt es durch die tetragonale Struktur nur vier mögliche nicht-entartete Orientierungen des NV-Zentrums. Bei Anregung entlang der [100]-Richtung im Diamantgitter haben alle Polardarstellungen nur zwei unterschiedliche Formen [26].

Auffallend bei den Daten ist, dass die maximalen Zählraten der NV-Zentren stark voneinander abweichen. Da das NV-Zentrum aus zwei orthogonalen Dipolen besteht, kann dieses Verhalten nicht mit der Dipolorientierung erklärt werden. Eine andere Möglichkeit ergibt sich durch unterschiedliche Absorptionsraten, verursacht durch absorbierende Schichten wie Graphit, die die NV-Zentren abschirmen. Dadurch kann die effektive Anregungsintensität zwischen den NV-Zentren variieren. Zusätzlich sinkt das Verhältnis zwischen emittierten und detektierten Photonen, da die Schichten auch die Fluoreszenz absorbieren. Dies müsste aus dem Sättigungsverhalten der NV-Zentren hervorgehen, da die Sättigung bei einer höheren Sättigungsintensität eintritt und dabei eine geringere Sättigungszählrate aufweist.

Zur Untersuchung des Sättigungsverhaltens wird die Polarisation für jedes der drei NV-Zentren auf den Wert maximaler Anregung gestellt und die Zählrate als Funktion der Anregungsleistung gemessen. Analog dazu sind für einige Leistungen auch die Hintergrundzählraten bestimmt. Abbildung 3.9(b) zeigt das Sättigungsverhalten der drei NV-Zentren. Die gestrichelten Linien entsprechen den hintergrundkorrigierten Messwerten. Die Anregungsleistung P wird dabei in die durchschnittliche Intensität I umgerechnet, indem die Leistung auf die aufgelöste Breite des NV-Zentrums verteilt wird

$$I = \frac{P}{\pi W_0^2}. \quad (3.17)$$

Wie in Kapitel 3.3 beschrieben wird

$$C(I) = \frac{C_{\text{sat}} I}{I_{\text{sat}} + I} \quad (3.18)$$

als Fitfunktion verwendet. Die Parameter C_{sat} und I_{sat} sind in der folgenden Tabelle zu finden:

	C_{sat} (1/s)	I_{sat} (mW/cm ²)
NV1	13620	425,2
NV2	9231	91,0
NV3	17386	56,6

NV1 zeigt also eine höhere Sättigungsintensität als NV2 und NV3. NV3 hat die höchste Sättigungszählrate. Das Verhalten von NV1 deutet bei gleicher Laserleistung auf eine geringere Anregungsintensität hin verglichen mit NV2 und NV3, wie für absorbierende Schichten beschrieben. Dennoch ist verglichen mit NV2 und NV3 kein eindeutiges Muster erkennbar. Der Grund dafür ist die breite Streuung der Lebensdauern unterschiedlicher NV-Zentren wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben. Aus den unterschiedlichen Emissionsraten folgen abweichende Sättigungszählraten.

3.7 Bestimmung der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums

Die Bedeutung der Lebensdauer bzw. Emissionsraten eines NV-Zentrums wurde bereits im Zusammenhang mit der Kopplung in Kapitel 2.3.3 erwähnt. Die relative Änderung der Emissionsrate gibt Informationen über die Umgebung des NV-Zentrums, die auch aus Wellenleitern oder Mikroresonatoren bestehen kann. Dadurch bietet sich die Möglichkeit, Informationen über die Kopplungseffizienz zwischen einem NV-Zentrum und der Nanofaser über die Lebensdauer des angeregten Niveaus zu erhalten. Um dies zu realisieren wird eine zuverlässige Methode benötigt, die diese Messung ermöglicht. In diesem Abschnitt wird anhand der Diamantprobe D, die aus oxidierten Nanodiamanten (ND2) besteht, die spontane Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums NV6 experimentell bestimmt.

Aus dem Sättigungsverhalten (Abbildung 3.10) ist sofort ersichtlich, dass die maximale Zählrate einen höheren Wert als bei anderen NV-Zentren erreicht. Dennoch zeigt die $g^{(2)}(\tau)$ -Messung (Abbildung 3.11(a)), dass es sich dabei um ein einzelnes NV-Zentrum handelt. Dies spricht für eine hohe Emissionsrate.

Für die Bestimmung der spontanen Lebensdauer wird die $g^{(2)}$ -Funktion für unterschiedliche Anregungsleistungen bestimmt, normiert, hintergrundkorrigiert und mit der Modellfunktion

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + ce^{-\frac{|\tau-\tau_0|}{\tau_2}} - (1+c)e^{-\frac{|\tau-\tau_0|}{\tau_3}} \quad (3.19)$$

aus Kapitel 2 gefittet. Die Exponentialfunktion mit dem Parameter τ_2 beschreibt dabei den *Antibunching Dip* und τ_3 das Korrelationsverhalten für größere Werte von τ . Der

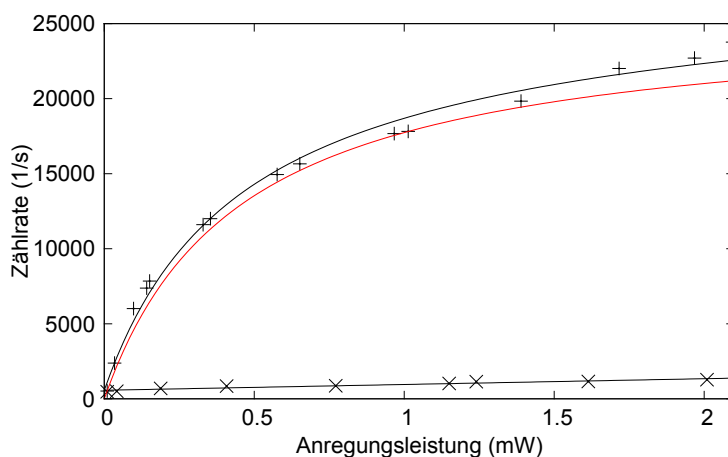


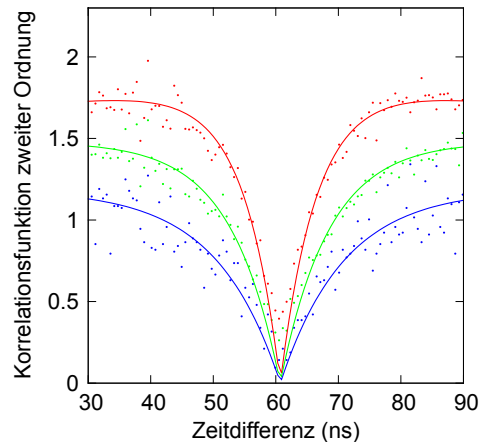
Abbildung 3.10: Sättigungsverhalten eines NV-Zentrums in einem oxidierten Diamantnanokristall mit außergewöhnlich hoher Sättigungszählrate. Schwarz: Messwerte und Fitfunktionen, Rot: Hintergrundkorrigierte Sättigungskurve.

Wert $\tau_2 = \tau_2(I)$ hängt von der Pumprate k_{12} in den angeregten Zustand ab. Dabei ist die Anregungsrate proportional zur Anregungsintensität $k_{12} = aI$, mit einer Konstanten a . Um die spontane Lebensdauer des angeregten Zustands $\tau_2^{(0)} = \bar{\tau}$ zu erhalten, werden die Parameter $\tau_2(I)$ auf den Wert $I = 0$ extrapoliert [9]. Dazu wird Gleichung 2.26 als Fitfunktion verwendet. Ein anderer Ansatz wäre, lediglich den zentralen *Antibunching Dip* mit einer Exponentialfunktion zu beschreiben und den Fit aus dem einfacheren Zwei-Niveau-System abzuleiten [10].

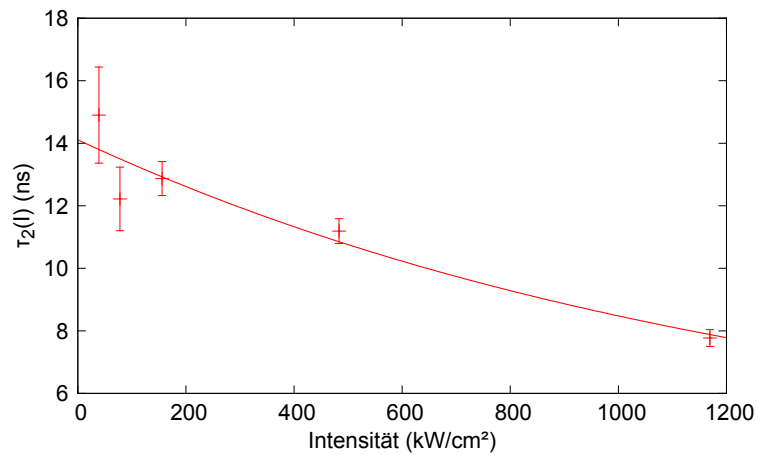
Abbildung 3.11 zeigt 3 der 5 aufgenommenen HBT-Messungen für Anregungsleistungen von 1,0 mW, 3,0 mW, 7,5 mW und die Extrapolation der 5 Werte (zusätzlich 0,1 mW und 0,5 mW) für τ_2 auf die Anregungsintensität 0 mW.

Als Ergebnis für dieses NV-Zentrum erhält man einen Wert von $\bar{\tau} = 14,2\text{ns} \pm 0,7\text{ns}$. Dieser stimmt mit der Beobachtung einer hohen Sättigungszählrate überein, da der durchschnittliche Wert der Lebensdauer von NV-Zentren auf einem Glassubstrat $\langle \bar{\tau} \rangle = 24,1\text{ns}$ entspricht [30].

Die Bestimmung der Lebensdauer ist eine wichtige Messung, die einen Einblick in das Verhalten der Energieniveaus des NV-Zentrums gibt. Durch die breite Streuung der Lebensdauern ist jedoch in der Regel ein aussagekräftiges Verhalten nur durch Aufnahme einer Statistik vieler NV-Zentren möglich. Dennoch bietet sich eine Möglichkeit den Einfluss unterschiedlicher Umgebungen des NV-Zentrums zu messen, unter der Voraussetzung, dass das gleiche NV-Zentrum auf zwei unterschiedlichen Substraten (z.B. planares Substrat und Nanofaser) analysiert werden kann. Eine Möglichkeit Nanodiamanten aufzunehmen und an einer anderen Position zu platzieren ist hierfür erforderlich. Dazu sei auf Kapitel 5 verwiesen.



(a) Korrelationsfunktionen



(b) Extrapolation der Lebensdauer

Abbildung 3.11: (a) Gemessene Korrelationsfunktionen eines NV-Zentrums für drei verschiedene Anregungsleistungen. Fitfunktionen entsprechen dem Drei-Niveau-System. Anregungsleistungen: Rot: 7,5 mW, grün: 3 mW, blau: 1 mW. (b) Extrapolation des Fitparameters τ_2 auf die Anregungsintensität $I = 0$.

3.8 Weitere Eigenschaften der NV Fluoreszenz

NV-Zentren können in den meisten Fällen einfach mit dem vorgestellten Modell beschrieben werden, dennoch gibt es viele Besonderheiten bei Festkörpersystemen, von denen eine genauer beschrieben werden soll. Obwohl die NV-Fluoreszenz zeitlich sehr stabil ist, sind Unregelmäßigkeiten im zeitlichen Verlauf der Zählrate zu finden. Bei einer langen Integrationszeit (einige 10 s) ist keine Abnahme der Zählrate (*Photobleaching*) zu beobachten. Bei kurzen Integrationszeiten hingegen treten bei einigen NV-Zentren Unterbrechungen der Fluoreszenz auf (*blinking*), die in Abbildung 3.12(a) für ein oxidiertes NV-Zentrum NV7 (ND2) auf Probe D zu sehen sind.

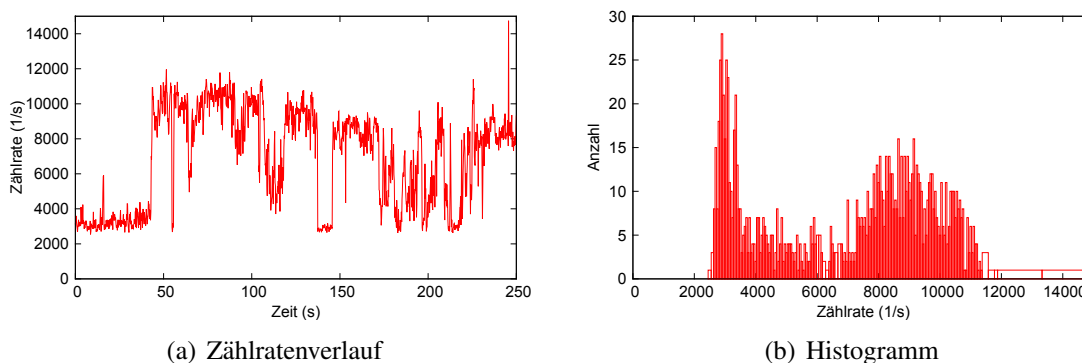


Abbildung 3.12: (a) Zählratenverlauf eines „blinkenden“ NV-Zentrums mit mehreren Sprüngen zwischen zwei Zuständen. (b) Histogramm der Zählraten.

Dabei springt die Zählrate zwischen zwei Stufen, von denen einer der aktivierte und der andere der deaktivierte Zustand ist. Die zwei Zustände werden sichtbar, wenn die Zählrate histogrammiert wird (Abbildung 3.12(b)). Das Histogramm zeigt deutlich die beiden möglichen Zustände die durch Zählratenfluktuationen eine gaußförmige Verteilung haben. Die leichte Abnahme der Zählrate des aktivierten Zustands hängt mit einem *Drift* des NV-Zentrums aus dem Fokus zusammen. Dadurch wird die Verteilung im Histogramm breiter.

Die Ursachen für blinkende Nanodiamanten sind nicht vollständig geklärt, aber *blinking* ist ein bekanntes Phänomen anderer Photonenemitter. In festkörperbasierten Quantenpunkten konnte gezeigt werden, dass Oberflächenfallenzustände das Elektron eines angeregten Exzitons einfangen und somit die Rekombination verhindern. Nach einiger Zeit kann das Elektron den Fallenzustand verlassen und die Fluoreszenz wird wieder aktiviert. Bei NV-Zentren kann der angeregte Zustand auch über die Bildung eines Exzitons beschrieben werden, aber im Gegensatz zu Quantenpunkten ist das NV-Exziton im Diamant an der Stelle des NV-Zentrums lokalisiert mit einem Radius $< 1\text{ nm}$ und Wechselwirkungen mit der Oberfläche sind schwach. Eine andere Möglichkeit sind lokale Unordnungen im Diamantgitter mit Fallenzuständen (vgl. [46]).

Dies ist nur eine der komplexen Eigenschaften der NV-Fluoreszenz. Zusätzlich treten

auch Effekte wie der Stark-Effekt oder der Jahn-Teller-Effekt [47] bei NV-Zentren auf.

Kapitel 4

Kopplung von NV-Zentren an eine optische Nanofaser

Im letzten Kapitel wurden die wesentlichen Eigenschaften der NV-Fluoreszenz auf planaren Proben untersucht. Der folgende Abschnitt zeigt die experimentelle Realisierung der Kopplung von NV-Zentren an *getaperte* Glasfasern und den Fortschritt zu einer fasergekoppelten Einzelphotonenquelle. Diese hat im wesentlichen zwei Vorteile gegenüber den planaren Proben: Erstens verspricht sie eine hohe Photonenausbeute und zweitens ist es für viele Anwendungen sinnvoll, wenn sich die aufgesammelten Photonen bereits in der geführten Mode einer optischen Faser ausbreiten. Um die nötigen Charakterisierungsmessungen durchzuführen, benötigt man neben einer stabilen Integration der Nanofasern in den Aufbau vor allem eine zuverlässige Methode die Diamantanokristalle gezielt ins evaneszente Feld der *getaperten* Glasfaser (d.h. auf die Oberfläche der Nanofaser) zu bringen. Für den Nachweis der Kopplung genügt die Detektion eines NV-Spektrums am Ausgang der Faser. Eine fasergekoppelte Einzelphotonenquelle muss hingegen *Antibunching* in der Intensitätskorrelationsfunktion des von der Faser aufgesammelten Fluoreszenzlichts aufweisen.

4.1 Aufbau und Stabilitätsmessungen

Die nachfolgenden Messungen zur Kopplung der NV-Fluoreszenz an das evaneszente Feld der Faser erfolgen mit demselben Konfokalmikroskop wie in Kapitel 3 beschrieben. Die Faserexperimente erfordern jedoch eine Modifikation des Aufbaus. Einerseits soll die Transmission der Faser bestimmt und andererseits Fluoreszenzlicht, das sich in einer geführten Mode ausbreitet, an beiden Faserenden detektiert werden. Als *getaperte* Glasfasern werden sowohl Nanofasern mit einem Durchmesser von 300 nm (Hergestellt in der Arbeitsgruppe A. Rauschenbeutel, Technische Universität Wien), als auch selbstgezogene Mikrofasern mit Durchmessern zwischen 2 μm und 20 μm verwendet (Details siehe Anhang A.1). Die Faser wird mit Klebstoff an beiden Seiten eines bügelförmigen Halters

befestigt, der an den Piezotisch montiert wird, wobei die Fasertaille zentral zwischen den Auflagepunkten des Halters liegt. Der Abstand zwischen den beiden Klebestellen beträgt 6 cm und ist so gewählt, dass der Klebstoff den Übergangsbereich des *taper* nicht berührt und somit keinen Einfluss auf die Propagation von Licht in der Glasfaser hat. Die Faserenden werden mit einem Newport Stecker (Bare Fiber Connector, Single Mode, FC Connector) versehen, um Verbindungen mit anderen Glasfasern herzustellen.

Zur Untersuchung der Transmissionseigenschaften der Nanofaser eignet sich ein stark abgeschwächter (ca. OD 6.5) Helium-Neon Laser mit einer Ausgangsleistung von 1,2 mW, dessen Wellenlänge von 632,7 nm ungefähr der ZPL des NV-Zentrums entspricht. Ein Faserstrahlteiler (FST), mit zwei Eingängen und zwei Ausgängen, teilt die Leistung im Verhältnis 10 : 1. Der 90 % Ausgang führt direkt zu einer APD4, die den Strahl zusätzlich mit einem OD3-Graufilter abschwächt. Dieses Signal hat die Funktion einer Referenz. Der 10% Ausgang hingegen führt zur *getaperten* Faser, bevor erneut eine APD3 zur Detektion des Signals dient. Ein Vergleich der Zählraten beider APDs gibt Aufschluss über die Transmission T der Nanofaser.

Um die in die *getaperte* Glasfaser emittierte NV-Fluoreszenz messen zu können, die durch die Kopplung zu angeregten Emittern auf der Taille entsteht, benötigt man Detektoren an jedem Glasfaserende. Die Detektion dieser Fluoreszenz wird im folgenden als Faserdetektion bezeichnet, wohingegen für die herkömmliche Detektion, über das Objektiv des Konfokalmikroskops, der Begriff konfokale Detektion steht. Die Faserdetektion ist an einem Faserende mit APD3 des Transmissionsaufbaus möglich und am anderen Ende wird eine APD5 verwendet, die an den freien Eingang des FST angeschlossen ist. Die Kopplung zwischen Ausgang 2 (*getaperte* Faser) und Eingang 2 (APD5) beträgt 90%. Dabei ist zu beachten, dass der FST zuverlässig für monochromatische Strahlung funktioniert, jedoch die Aufteilung eines breiten Spektrums (z.B. das NV-Spektrum) eine starke Wellenlängenabhängigkeit hat. Für quantitative Messungen ist es deshalb nötig, die Nanofaser direkt an APD5 anzuschließen. Neben der Messung der Zählrate ist auch die Aufnahme eines faserdetektierten Spektrums möglich. Abbildung 4.1 zeigt den modifizierten Aufbau des Konfokalmikroskops.

Nach dem Einbau der Nanofaser wird zunächst die Transmission der Faser und ihre Stabilität bestimmt. Der zeitliche Zählratenverlauf des durch die Nanofaser transmittierten Laserlichts ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Die Zählrate von APD3 schwankt um 33800 1/s mit einer Standardabweichung (RMS) von 3000 1/s $\hat{=}$ 9%. Die Standardabweichung der Referenz-APD (APD4) ist 3,7% bei einer mittleren Zählrate von 6800 1/s. Insgesamt erhält man mit diesen Werten und dem Verhältnis, in dem der He-Ne Laserstrahl geteilt wird, eine mittlere Transmission von lediglich 5% (schwarze Linie).

Vor allem die Stabilität der Transmission hängt von einigen möglichen Fehlerquellen ab. Durch die Kombination mehrerer Glasfasern mit jeweils einer Reflektivität von 3% an Eingang und Ausgang bildet sich ein Fabry-Perot-Resonator, der zu langsamen Drifts der detektierten Transmission führen kann. Schnelle Drifts hingegen sind bei starken Vibrationen der Nanofaser zu beobachten, die eine Krümmung des Übergangsbereichs zur Folge haben und somit das adiabatische Kriterium verletzen. Die Ursache dieser Schwingungen

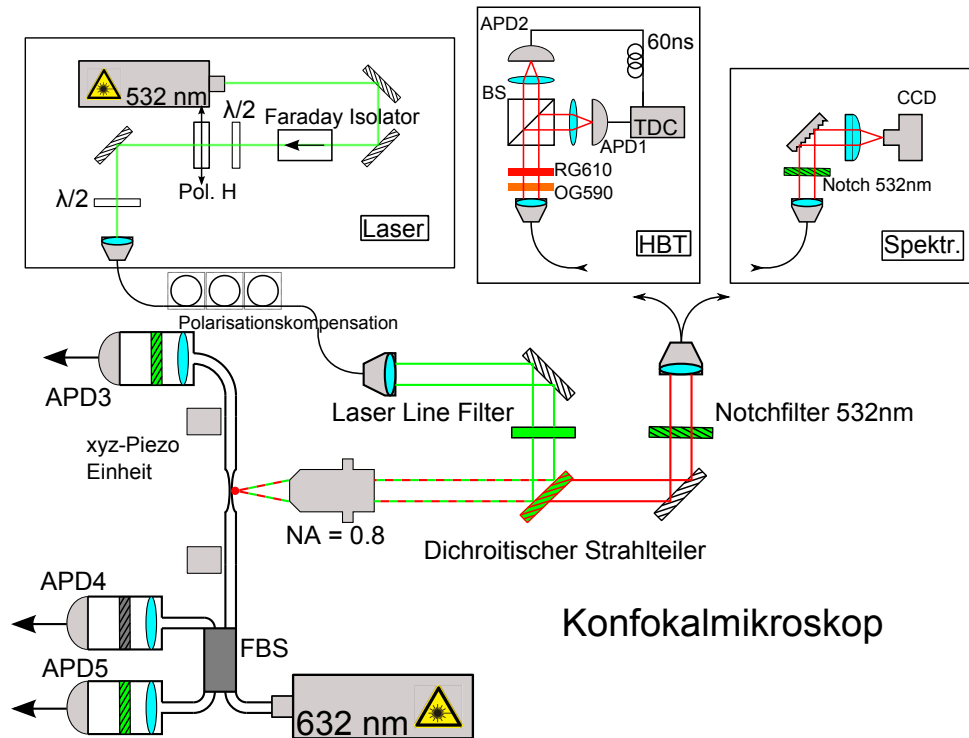


Abbildung 4.1: Aufbau des Konfokalmikroskops mit den im Text erwähnten Modifikation für die Messungen an *getaperten* Glasfasern.

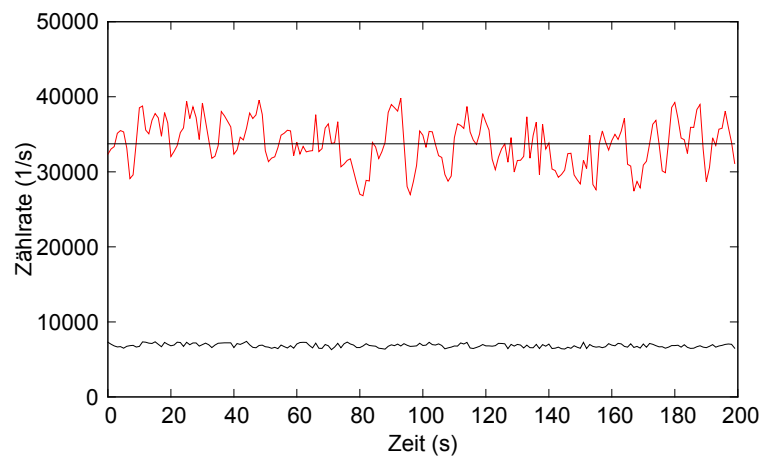


Abbildung 4.2: Transmissionsverhalten der Nanofasern. Rot: Zählrate der APD3 hinter der Nanofaser. Schwarz: Zählrate der Referenz-APD4. Die Linie markiert die durchschnittliche Transmissionszählrate.

ist oft die schwache Spannung der *getaperten* optischen Faser. Eine weitere Fehlerquelle der Stabilitätsmessung stellen die Newport-Stecker dar. Diese müssen bündig mit den kontaktierten Faserenden abschließen, damit eine stabile Transmission gewährleistet ist. Zur Überprüfung der Kontaktierung wird ein *fiber inspection scope* mit geringer Tiefenschärfe verwendet.

Sobald sich eine stabile Transmission eingestellt hat, werden Diamantanokristalle auf die Fasertaille aufgebracht. Dabei soll die Möglichkeit gewährleistet sein, die Faser zunächst ohne und später mit Nanokristallen zu scannen, um durch den Vergleich beider Aufnahmen, NV-Zentren leichter nachweisen zu können. Da der Scanbereich der Piezos lediglich $80\ \mu\text{m}$ beträgt, kann die Faser dazu nicht aus dem Aufbau entfernt werden, da ansonsten keine reproduzierbaren Scans der gleichen Stelle möglich sind. Der folgende Abschnitt beschreibt drei Techniken, die für das Aufbringen der Nanokristalle in Frage kommen. Ein grundsätzlicher Unterschied zu der Vorgehensweise auf planaren Substraten ist einerseits, dass die Verwendung von PVA die Transmission der Faser reduziert, da das evaneszente Feld daran gestreut wird, und deshalb die Einbettung in ein Polymer nicht mehr möglich ist. Andererseits können die Fasern nicht zufriedenstellend gereinigt und hydrophilisiert werden, da die mechanischen Eigenschaften zu instabil sind und eine Bearbeitung zum Reißen der Fasern führt. Aus diesem Grund muss außerdem auf das *spin coat* verzichtet werden.

4.2 Aufbringen der Diamantanokristalle an die Fasertaille

Zum Aufbringen der Nanokristalle auf die Nanofaser werden drei verschiedene Methoden verwendet, die sich in wesentlichen Punkten unterscheiden.

Methode 1

Der einfachste Ansatz für dieses Vorhaben ist schlicht die Verwendung einer Pipette, mit der von Hand ein Tropfen der Diamantsuspension (ND1, Verdünnung 1:100) über die Fasertaille geführt wird. Eine mit dieser Methode präparierte Mikrofaser F1 mit einem Durchmesser $D \approx 9\ \mu\text{m}$ enthält einzelne NV-Zentren, die in einem konfokal aufgenommenem HBT-Experiment *Antibunching* zeigen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.3 zu sehen.

Trotz der erfolgreichen konfokalen Detektion ist eine Faserdetektion mit dieser Methode nicht möglich. Durch die Vielzahl an NV-Zentren wird die NV-Fluoreszenz innerhalb der Fasertaille an anderen Nanokristallen gestreut und die Transmission sinkt zu stark, sodass keine ausreichende Zählrate in der Faserdetektion messbar ist.

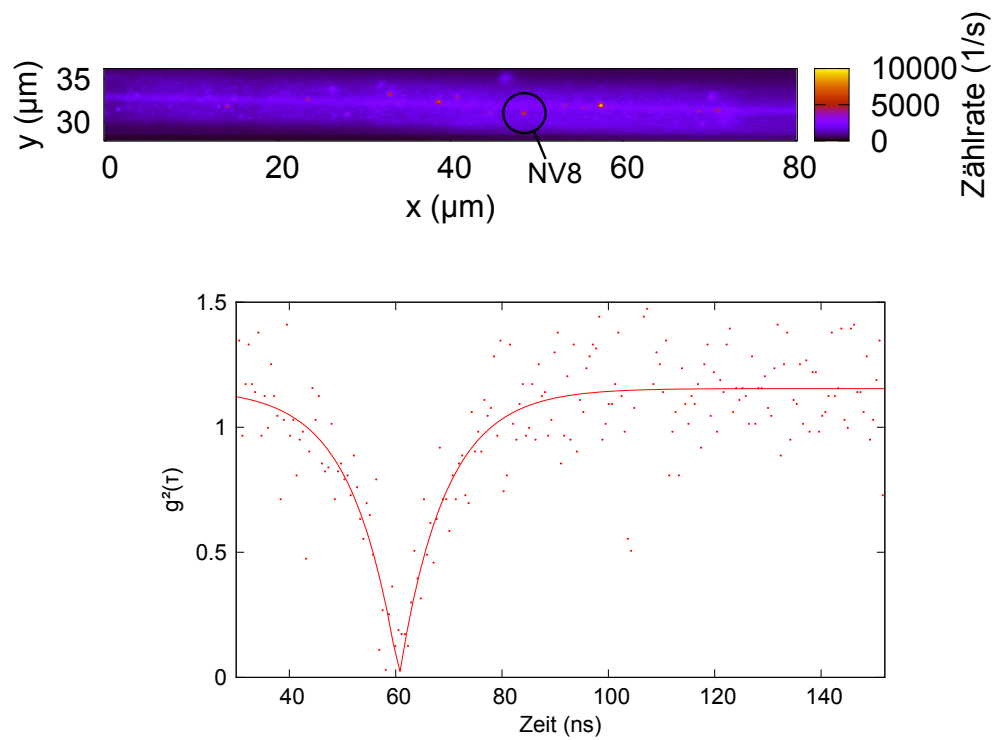


Abbildung 4.3: Konfokaler Scan und HBT-Messung eines NV-Zentrums NV8 auf einer *getaper-*ten Glasfaser. Der *Antibunching Dip* deutet auf ein einzelnes NV-Zentrum hin.

Methode 2

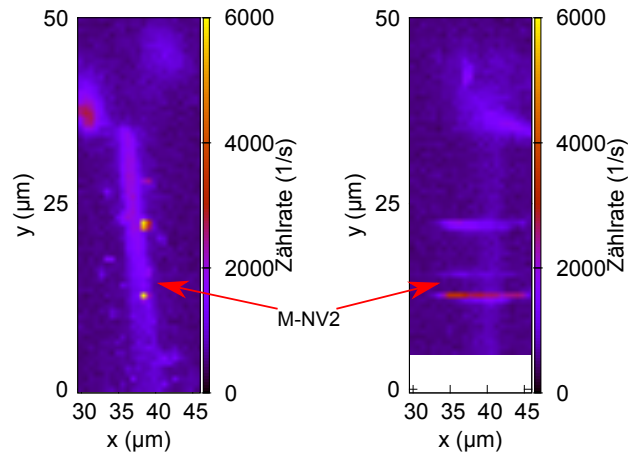
Eine ideale Methode zeichnet sich dadurch aus, dass lediglich ein einzelnes NV-Zentrum auf die Faser gebracht wird, das vorher zusätzlich auf seine Eigenschaften untersucht werden kann. In einem ersten Versuch diese Voraussetzungen zu erfüllen, wurden mit der abgebrochenen Spitze einer Mikrofaser die Diamantnanokristalle auf die Nanofaser übertragen. Die Faserspitze ist dabei im Konfokalmikroskop auf einem zusätzlichen Piezotisch angebracht. Die Nanokristalle werden zuerst auf die Faserspitze getropft und ein Scan bestimmt die Position von NV-Kandidaten. Wenn ein NV-Zentrum detektiert ist, kann die Mikrofaserspitze um 180° gedreht und durch die Piezos in Kontakt mit der Nanofaser gebracht werden. Dabei soll der Nanokristall auf die Nanofaser übertragen werden.

Wie die Messungen belegen, haften oxidierte Diamantnanokristalle besser an der Faserspitze als nicht-oxidierte, da diese meist zur Bildung von Diamantclustern neigen, oder es bei geringeren Konzentrationen zu keinen NV-Funden kommt. Deshalb werden die oxidierten M-NV-Diamanten verwendet. Ein Scan der Vorder- und Rückseite der Faserspitze sowie die nicht-normierte $g^{(2)}$ -Funktion eines M-NV-Zentrums sind in Abbildung 4.4 gezeigt. Die Übertragung auf die Nanofaser bereitet allerdings Probleme, da Faserspitze und Nanofaser stark aneinander haften und eine Feineinstellung der Piezos somit nicht möglich ist. Außerdem ist die Position der Nanokristalle, bei der ein Übertrag möglich ist, durch die Krümmung der Faserspitze enorm eingeschränkt. Die exakte Position des Nanokristalls auf der Rückseite der Faserspitze, kann jedoch unter gewissen Bedingungen bestimmt werden. Ist die Faserspitze ausreichend dünn, kann das NV-Zentrum in einem konfokalen Scan durch die Faserspitze beobachtet werden. Durch die Krümmung sind dabei Linseneffekte zu beobachten, die im Idealfall zu einer homogenen Helligkeit der NV-Fluoreszenz entlang der x-Achse (senkrecht zur Faserspitze) führen und somit als waagrechter Strich im Scanbild erscheinen. Befindet sich das NV-Zentrum nicht direkt auf der Rückseite, wird diese Fluoreszenzlinie auf eine Seite hin verschoben und zeigt unterschiedliche Intensitäten (Abbildung 4.4(b)-(c)). Durch dieses Verhalten lässt sich überprüfen, ob der Nanokristall auf die Nanofaser übertragen werden kann. Dennoch können lediglich größere Gruppen von Nanokristallen auf der Nanofaser nachgewiesen werden und das Adressieren eines einzelnen NV-Zentrums ist nicht möglich.

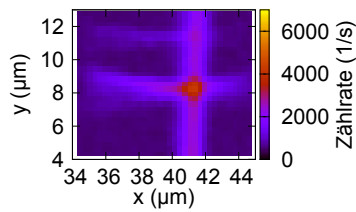
Methode 3

Eine erfolgreichere Methode zur Übertragung der Diamanten ist ihre Anwendung in einer Flüssigkeit. Mit einer Spritze, die mit der Diamantsuspension gefüllt ist, und an deren Kanüle erneut eine abgebrochene Mikrofaserspitze befestigt ist, werden Tropfen auf die Spitze appliziert. Diese können dabei Durchmesser $> 100 \mu\text{m}$ haben. Die Tropfen werden in Kontakt mit der Nanofaser gebracht und nach einiger Zeit wieder entfernt. Das Prinzip ist in Abbildung 4.5(a) skizziert.

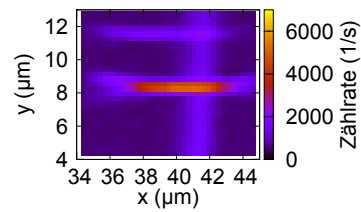
Die Größe des Tropfens kann dabei wie folgt abgeschätzt werden. Bei Beleuchtung mit einem Anregungslaser, kann die Projektion des Tropfens auf die Rückwand des Aufbaus



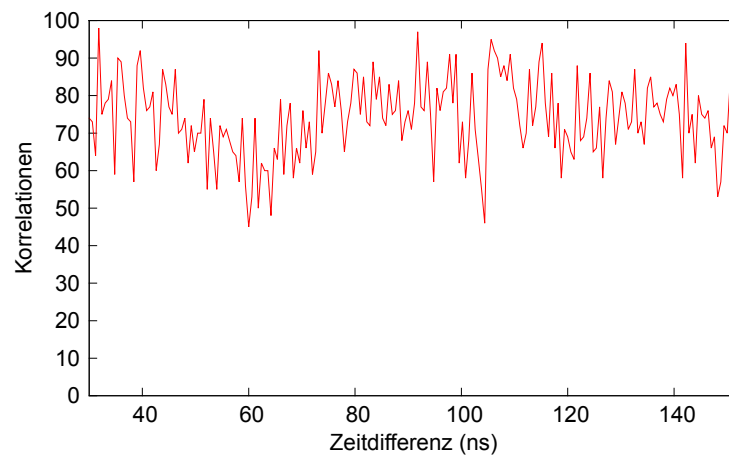
(a) Scan der Vorder- und Rückseite einer Mikrofaserspitze mit Nanodiamanten



(b) Rückseite 1



(c) Rückseite 2



(d) nicht-normierte HBT-Messung an M-NV2

Abbildung 4.4: (a) Scan der Faserspitze (Vorder- und Rückseite). Die Pfeile deuten die Position eines einzelnen M-NV-Kristalls an. (b),(c) Scan der Rückseite für zwei unterschiedliche Positionen der Faserspitze. (d) HBT-Messung des M-NV-Zentrums (M-NV2).

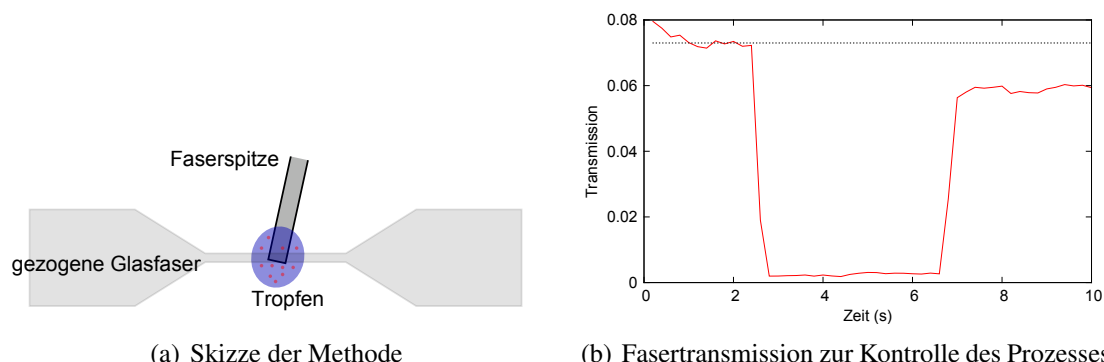


Abbildung 4.5: Methode zum Aufbringen von Diamantnanokristallen auf eine Nanofaser. Der Tropfen besteht aus einer Diamantsuspension geringer Konzentration und wird kurzzeitig mit der Nanofaser in Kontakt gebracht. Dadurch bleiben einige Nanokristalle an der Nanofaser hängen und verringern die Transmission.

mit der Faserspitze verglichen und so der Durchmesser bestimmt werden. Messungen der Belegungsdichte auf der Nanofaser, bei hohen NV-Konzentrationen zeigen, dass der Tropfendurchmesser dadurch mit ausreichender Genauigkeit abschätzbar ist. Zur Bestimmung der nötigen Konzentration dient eine Berechnung der Anzahl N der Diamantnanokristalle in einem Tropfen mit dem Volumen V_T . Die Dichte von Diamant ist $\rho = 3,52 \text{ g/cm}^3$ und das mittlere Volumen der Nanokristalle ist $\langle V_{ND} \rangle$. Die Konzentration der unverdünnten Nanodiamantsuspension ist $c = 0,2 \frac{\text{g}}{100 \text{ ml}}$ ($0,2\% \text{ w/v}$) und man erhält

$$N = \frac{\tilde{c} V_T}{\rho_D \langle V_{ND} \rangle} \quad (4.1)$$

mit der Verdünnung \tilde{c} . Während des Aufbringens der Diamantnanokristalle wird eine Transmissionsmessung durchgeführt. Sobald der Tropfen die Nanofaser berührt, bricht die Transmission dabei fast vollständig zusammen, da das Licht effektiv von dem Wassertropfen (Brechungsindex $n = 1,3$) geführt wird. Wie bereits geschildert (Kapitel 2.3) ist ein adiabatisches Kriterium zu erfüllen, damit das Licht bei einer Änderung des Wellenleiters nicht in höhere Moden übergeht. Das ist bei einem Tropfen nicht gewährleistet und deshalb sinkt die Transmission stark ab, da die höheren Moden nach der Propagation durch den Tropfen nicht mehr in der Nanofaser geführt werden können. Wird der Tropfen entfernt, steigt die detektierte Zählrate instantan an. Da Diamantnanokristalle auf der Faser zurückgeblieben sind, erreicht sie allerdings nicht den Ausgangswert. Durch die niedrige Ausgangstransmission der verwendeten Nanofasern ist der Transmissionsunterschied selbst für mehrere Nanokristalle relativ gering und schwer vom Rauschen zu unterscheiden. Der beschriebene Verlauf der Transmission ist in Abbildung 4.5(b) zu sehen.

4.3 Eigenschaften von Diamantanokristallen auf Nanofasern

Befindet sich eine *getaperte* optische Faser im Aufbau, auf der durch Anwendung von Methode 3 Diamantanokristalle angebracht sind, dienen Scans zur Identifizierung von NV-Zentren. Dabei wird über das Mikroskopobjektiv angeregt. Durch den Aufbau ist die Möglichkeit gegeben, die NV-Fluoreszenz sowohl konfokal, als auch über die Faser zu detektieren. Ein Vergleich einer konfokalen Detektion mit einer Faserdetektion ist in Abbildung 4.6 gezeigt.

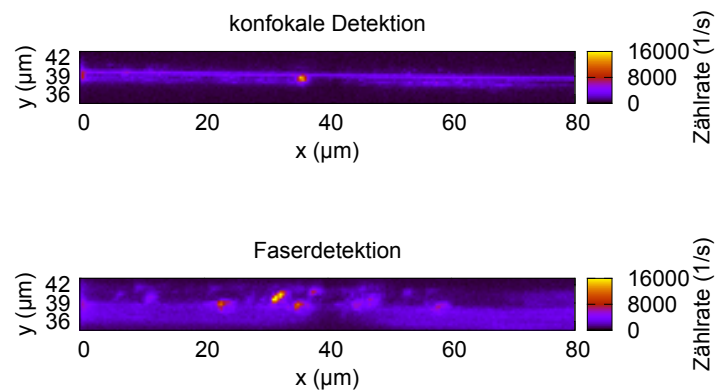


Abbildung 4.6: Oben: Konfokaler Scan einer Faser mit Diamantanokristallen. Darauf befindet sich ein leuchtender Punkt. Unten: Faserdetektion im gleichen Scan mit einer Vielzahl an Punkten erhöhter Zählrate.

Vergleicht man beide Bilder, fällt auf, dass sich im Scan konfokaler Detektion ein Punkt mit erhöhter Zählrate befindet, wohingegen im Faserdetektionsscan mehrere dieser Punkte zu finden sind. Die Interpretation der Punkte, die im Faserscan leuchten, ist die, dass sich auf der Probe mehrere Diamantanokristalle oder andere Partikel befinden, die keine NV-Zentren enthalten und somit im konfokalen Scan dunkel bleiben. Licht des Anregungslasers wird allerdings an diesen Partikeln gestreut und für „gewisse Streuwinkel“ wird er in die *getaperte* Faser gekoppelt, wenn ein Überlapp zwischen dem gestreuten Lichtfeld und einer Mode der Faser besteht. Da der monochromatische Anregungslaser mit einem Notch-Filter direkt vor den APDs gefiltert wird, muss der Grund der höheren Zählraten durch langwelligeres Licht verursacht werden. Wenn das Licht des Anregungslasers bei der Einkopplung in die Faser monochromatisch ist, muss Faserfluoreszenz auf dem Weg zu den APDs entstehen. Trotz der geringen Laserintensität scheint dies der Fall zu sein. Doch zunächst soll der Effekt beschrieben und überprüft werden, der dafür verantwortlich ist, dass Anregungslaserlicht über Nanokristalle in die Faser koppelt.

Die elastische Streuung von Licht an Partikeln, die viel kleiner als die Wellenlänge λ sind, wird durch die Rayleigh-Streuung beschrieben. Diese ist in vielen Textbüchern enthalten [44] und beruht auf der Erzeugung eines induzierten Dipolmoments $\mathbf{p}(t) = \alpha \mathbf{E}(t)$ in

dem Nanoteilchen, verursacht durch das elektrische Feld des Anregungslasers $E(t)$. Dabei ist α die Polarisierbarkeit des Mediums. Der Streuquerschnitt der Rayleigh-Streuung ist proportional zur vierten Potenz der Anregungsfrequenz $\sigma \propto \omega^4 = \frac{16\pi^4 c^4}{\lambda^4}$, die Streuintensität nimmt mit dem Abstand r auf $\frac{1}{r^2}$ ab und die Richtungsabhängigkeit ist gegeben durch das Abstrahlverhalten eines Hertz'schen Dipols

$$I_{\text{streu}} = \frac{I_0 \alpha^2 \pi^2 \sin^2(\phi)}{\epsilon_0^2 \lambda^4 r^2}, \quad (4.2)$$

wobei ϕ dem Winkel zwischen der Ausrichtung des induzierten Dipols und des gestreuten Lichts entspricht [48]. Damit das gestreute Laserlicht effizient in die Nanofaser eingekoppelt werden kann, muss der induzierte Dipol senkrecht zur Faserachse ausgerichtet sein und somit muss die Polarisation des Anregungslasers ebenfalls senkrecht zur Faserachse sein. Da die Ausrichtung der Nanofaser im Experiment und der eintreffende Laserstrahl in einer horizontalen Ebene liegen, sollte horizontal polarisiertes Licht schwächer in die Faser koppeln als vertikal polarisiertes. Durch die Polarisationsabhängigkeit der Rayleigh-Streuung lässt sich überprüfen, ob die beobachtete Einkopplung des grünen Laserlichts in die Nanofaser durch Rayleigh-Streuung verursacht wird. Ein Punkt auf einer Nanofaser, dessen Zählrate nur im Faserscan erhöht ist, wird dazu für verschiedene Polarisationsrichtungen des Anregungslasers gemessen. Abbildung 4.7 zeigt die faserdetektierte Zählrate der Fluoreszenz einer Nanofaser, die durch das Anregungslaserlicht verursacht wird, als Funktion der Anregungspolarisation.

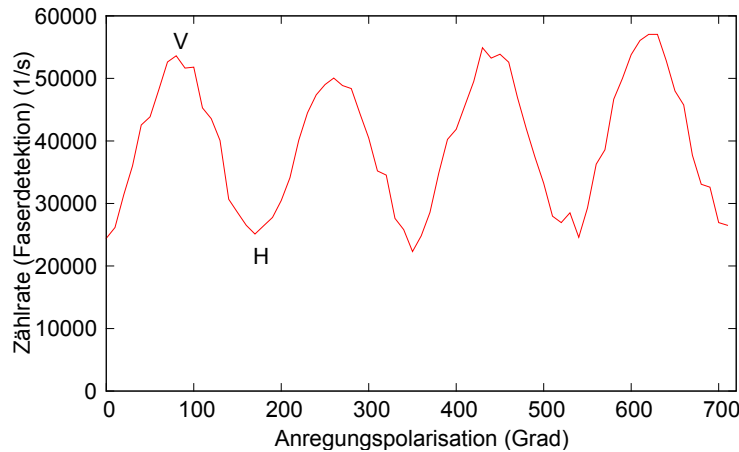


Abbildung 4.7: Experimentelle Überprüfung der Polarisationsabhängigkeit der Rayleighstreuung. Ein horizontal polarisierter Anregungslaser koppelt deutlich schwächer in die Nanofaser als ein vertikal polarisierter. Dieses Verhalten deutet darauf hin, dass die Ursache der erhöhten Zählrate im Faserdetektionsscan durch die Einkopplung des Anregungslaser verursacht wird.

Im wesentlichen wird dadurch die Hypothese unterstützt, dass die detektierte Zählrate durch Faserfluoreszenz, hervorgerufen durch die Einkopplung des grünen Lasers, verursacht wird. Unregelmäßigkeiten ($C(|H|) > 0$) können durch die Form der Diamant-

nanokristalle erklärt werden. Während Gleichung 4.2 für punktförmige Streukörper oder sehr kleine kugelförmige Partikel gilt, ist die wahre Form der Nanokristalle eher splinterförmig, wodurch Abweichungen zustande kommen und Rayleighstreuung auch parallel zur Anregungspolarisation auftreten kann. Außerdem besteht die Möglichkeit, dass mehrere Diamantanokristalle einen *Cluster* bilden und somit größer sind als es die Bedingung für Rayleigh-Streuung erfordert. In diesem Fall müsste die Mie-Streuung zur Beschreibung verwendet werden.

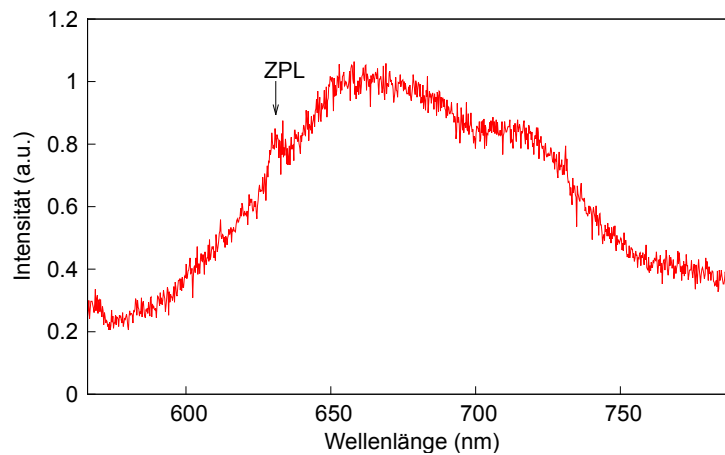
4.4 Experimentelle Überprüfung der Kopplung von NV-Zentren an eine Nanofaser

Zur Untersuchung der Kopplung von NV-Zentren an die Nanofaser wurden zwei Fasern (NF1 und NF2) präpariert. Beide Nanofasern unterscheiden sich darin, dass NF1 mit den ND3-Diamanten (hohe NV-Konzentration), während NF2 mit oxidierten Nanokristallen (ND2) versehen ist. Zusätzlich ist die absolute Anzahl angebrachter Nanokristalle an NF1 deutlich höher.

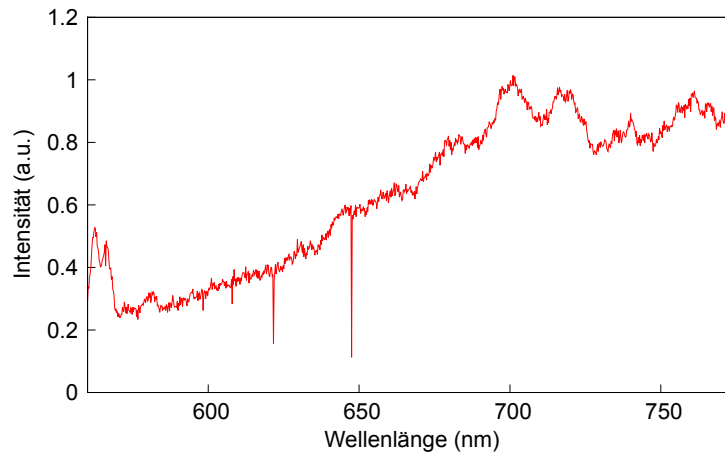
Die beiden Nanofasern werden wie beschrieben in den Aufbau integriert und durch Scans mit konfokaler Anregung wird die Position möglicher NV-Zentren ermittelt. Die Identifikation von NV-Zentren erweist sich dabei wegen Vibrationen der gespannten Faser als schwierig. Allerdings zeigt die Aufnahme konfokal detektierter Spektren eindeutig NV-Emission. Auf jeder Nanofaser wird ein Diamantanokristall, der durch konfokale Anregung und Detektion als NV-Zentrum (M-NV3 auf NF1 und NV8 auf NF2) identifiziert wurde, genauer untersucht. Bei Anregung über das Mikroskopobjektiv soll für beide NV-Zentren ein faserdetektiertes Spektrum aufgenommen werden um die Kopplung der NV-Fluoreszenz an die Nanofaser zu verifizieren. Beide Spektren sind in Abbildung 4.8 dargestellt.

Das gemessene Spektrum von NF1 zeigt ein NV-Spektrum mit ausgeprägter ZPL. Das gemessene Spektrum von NF2 zeigt hingegen das intrinsische Fluoreszenzspektrum der verwendeten Einmoden-Glasfasern. Der Unterschied beider Spektren soll nun erklärt werden. Erstens unterscheiden sich beide Messungen durch die verwendeten Diamantanokristalle. Wie bereits erwähnt, enthalten die an NF1 angebrachten M-NV Diamanten im Durchschnitt mehr als ein NV-Zentrum. Es ist also anzunehmen, dass bei der Messung mehrere NV-Zentren angeregt wurden und somit deutlich mehr NV-Fluoreszenz in die Nanofaser gekoppelt wird, während die eingekoppelte Leistung des Anregungslaserlichts durch diesen Effekt nicht erhöht wird. Deshalb ist das Verhältnis von NV-Fluoreszenz zu Hintergrundfluoreszenz höher und das NV-Spektrum hebt sich von der intrinsischen Faserfluoreszenz ab.

Ein zweiter Erklärungsansatz wäre wie folgt. Nach Anregung des NV-Zentrums propagiert sowohl das Licht des Anregungslasers, als auch die NV-Fluoreszenz in der Nanofaser. Da einerseits der Anteil der Intensität des evaneszenten Feldes an der Gesamtinten-



(a) Nanofaser NF1 (multi-NV Diamanten (ND3)) (NV-Eigenschaften)



(b) Nanofaser NF2 (oxidierte Diamanten (ND2))(Faserfluoreszenz)

Abbildung 4.8: Faserdetektierte Spektren angeregter NV-Zentren auf der Fasertaille zweier unterschiedlich präparierter Nanofasern NF1 und NF2. Das Spektrum von NF1 zeigt NV-Eigenschaften, während das Spektrum von NF2 lediglich der Eigenfluoreszenz der Glasfaser entspricht.

sität der geführten Mode mit der Wellenlänge des Lichts variiert und andererseits auch der Streuquerschnitt von Partikeln auf der Fasertaille eine Wellenlängenabhängigkeit zeigt, ist eine unterschiedlich starke Auskopplung von Anregungslaserlicht und NV-Fluoreszenz zu erwarten. Aus Abbildung 2.11(b) folgt, dass der Anteil des evaneszenten Feldes für beide Wellenlängen (532 nm und 637 – 700 nm) in etwa identisch ist. Unter der Annahme von Rayleigh-Streuung ($\sigma(\lambda) \propto 1/\lambda^4$) ergibt sich für eine Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm eine Verdoppelung des Streuquerschnitts, verglichen mit Licht der ZPL von NV-Zentren (637 nm). Wir vermuten daher, dass Licht des grünen Lasers stärker über andere Nanokristalle aus der Faser ausgekoppelt wird als die emittierte Fluoreszenz der NV-Zentren. Mit den beschriebenen Überlegungen kann ansatzweise der Unterschied der beiden in Abbildung 4.8 gemessenen Spektren erklärt werden. Um jedoch zwischen den beiden Erklärungsversuchen unterscheiden zu können wären zusätzliche Messungen notwendig. Insbesondere die Streuung des in der Faser propagierenden grünen Laserlichts muss genauer untersucht werden. Hierfür bietet sich an, den Transmissionsunterschied zwischen einer „sauberen“ Nanofaser und einer mit Nanokristallen versehenen zu vergleichen. Abbildung 4.5(b) zeigt den Transmissionsunterschied für He-Ne Laserlicht. Ein Vergleich mit einem Laser, der bei 532 nm emittiert, könnte zu einer Quantifizierung der unterschiedlichen Streuverluste führen. Es könnte auch versucht werden, die Streuung direkt zu beobachten, indem die Aufsammeloptik von der Anregungsoptik entkoppelt wird und Nanokristalle, an denen das propagierende Licht streut, direkt beobachtet werden.

Es konnte also Kopplung der NV-Fluoreszenz in die Nanofaser nachgewiesen werden, jedoch zeigt ein faserdetektiertes HBT-Experiment kein *Antibunching*. Deshalb kann angenommen werden, dass sich das faserdetektierte Spektrum von NF1 aus der Fluoreszenz mehrerer NV-Zentren und einem ausgeprägten Hintergrund zusammensetzt. Um das beschriebene System als fasergekoppelte Einzelphotonenquelle nutzen zu können, sind also einige Modifikationen notwendig. Dazu sollen im folgenden die wesentlichen Störfaktoren der Messungen beschrieben und mögliche Lösungen aufgezeigt werden.

4.5 Notwendige Optimierungen für eine faserdetektierte Einzelphotonenemission

Ein wesentliches Problem der Nanofasern ist die Langzeitstabilität der Transmission. Durch die kontinuierliche Anlagerung von Staubpartikeln aus der Luft nimmt die Transmission rapide ab (siehe Abbildung 4.9). Dadurch ist die maximale Messzeit auf einige Stunden begrenzt und somit wichtige Messungen wie die Bestimmung der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums ausgeschlossen. Dieses Problem kann nur reduziert werden, wenn sich der gesamte Versuchsaufbau in einer Reinraumumgebung, z.B. durch Verwendung einer *Flowbox*, befindet.

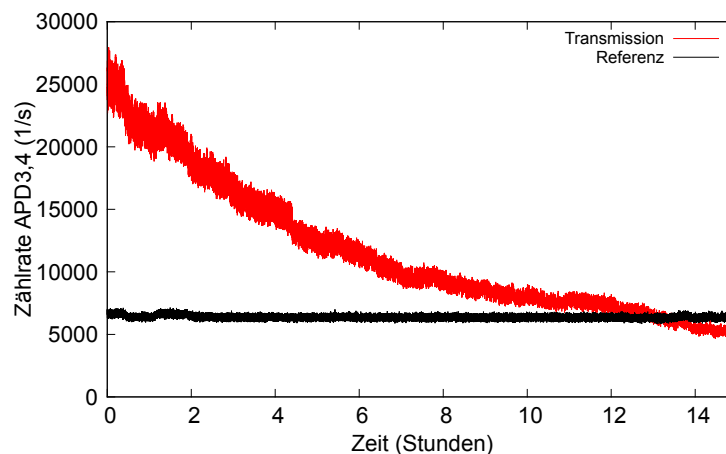


Abbildung 4.9: Abnahme der Transmission einer Nanofaser. Rot: Transmissionszählrate. Schwarz: Referenzzählrate. Durch optische Komponenten (Filter, Strahlteiler) entspricht der Wert der Zählrate der Referenz-APD einer Transmission von 1 %.

Ein anderes Problem stellen die Schwingungen der Nanofaser dar. Durch den großen Abstand der Stellen, an denen die Faser am Halter fixiert ist, und durch die teilweise geringe Spannung der Nanofaser, oszilliert diese bei geringfügigen Luftfluktuationen und beim Verfahren des Piezotisches. Abbildung 4.10 zeigt den typischen zeitlichen Verlauf der Zählrate eines angeregten NV-Zentrums auf einer locker gespannten Nanofaser.

Zusätzlich zu den Schwankungen der Zählrate verursachen diese Fluktuationen geringfügige Änderungen der Transmission der Faser. Deshalb wird die Halterung der Fasern dahingehend geändert, dass die Möglichkeit des Nachspannens besteht. Bei den neuen Haltern kann der Abstand der fixierten Punkte durch drehen einer Schraube verändert werden, indem ein Arm des Halters minimal verbogen wird. Da die Nanofasern in axialer Richtung eine hohe Zugfestigkeit haben ist dieses Vorgehen einfach umsetzbar. Dennoch ist darauf zu achten, dass sich die Transmissionseigenschaften der Nanofaser durch die Spannung nicht ändern. Messungen mit Mikrofasern zeigen, dass durchaus Änderungen der Transmission zu beobachten sind, diese aber in einem akzeptablen Rahmen stattfinden. Erste Beobachtungen zeigen, dass der neue Halter dieses Problem löst.

4.5 Notwendige Optimierungen für eine faserdetektierte Einzelphotonenemission 63

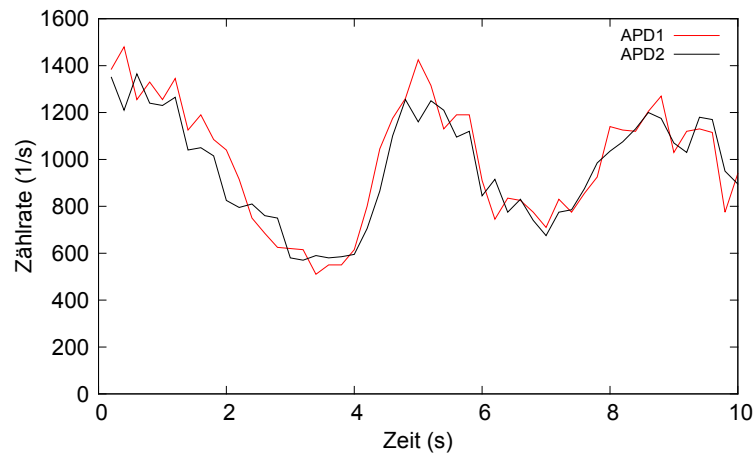


Abbildung 4.10: Oszillation der Zählrate eines angeregten NV-Zentrums auf der Nanofaser. Diese entspricht den Schwingungen der Nanofaser.

Während die bisher erwähnten Schwierigkeiten relativ einfache und schnell umsetzbare Lösungsansätze haben, stellt die Beseitigung der intrinsischen Fluoreszenz der Faser ein großes Problem dar. Sie resultiert aus der Anregung von Dotieratomen (i.d.R. Germanium), die den Brechungsindexunterschied zwischen Kern und Mantel herbeiführen. Zusätzlich kann Ramanstreuung zu langwelligeren Anteilen im Laserlicht beitragen. Für die Unterdrückung der Faserfluoreszenz sind verschiedene Ansätze möglich.

Eine naheliegende Antwort wäre die Verwendung anderer Glasfasern, die weniger Fluoreszenz zeigen. Es gibt bereits spezielle Arten von Glasfasern, die besonders fluoreszenzarme Propagation von Licht garantieren. Dennoch ist die Verwendung nicht möglich, da der Herstellungsprozess der *getaperten* Glasfasern zahlreichen Beschränkungen unterliegt. Dabei zeigen die Glasfaserarten, die sich zum *tapern* eignen, im wesentlichen dieselbe Eigenfluoreszenz. Da das NV-Zentrum über ein breites Absorptionsspektrum verfügt ist auch die Verwendung einer anderen Anregungswellenlänge theoretisch möglich. Dadurch lässt sich unter Umständen der Hintergrund beeinflussen und reduzieren. Ein Versuch, die Anregungswellenlänge zu ändern, wurde mit einem Helium-Neon Laser realisiert. Dazu wird der Laserstrahl in eine Glasfaser eingekoppelt, anschließend mit einem Notchfilter für 632 nm gefiltert und zu einem Spektrometer geführt. Auf diese Weise entsteht ein Spektrum der intrinsischen Faserfluoreszenz, verursacht durch den Helium-Neon Laser. Dieses unterscheidet sich eindeutig von dem Spektrum bei Verwendung eines Lasers mit einer Emissionswellenlänge von 532 nm. Dennoch sind weitere Erkenntnisse hinsichtlich des Absorptionsverhaltens von NV-Zentren notwendig, da die Absorption nicht zwangsläufig eine strahlende Relaxation nach sich zieht. So könnte sich das angeregte NV-Zentrum im metastabilen *Shelving*-Niveau befinden.

Eine Möglichkeit den Hintergrund zu minimieren, ist die Anregungsleistungsabhängigkeit der Faserfluoreszenz zu messen und das optimale Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu ermitteln. Das Experiment erfolgt zunächst mit einem Testaufbau, mit einer 2 m langen Glasfaser, deren Typ (Thorlabs SM600) identisch zu der *getaperten* Faser ist.

Der Aufbau ist in Abbildung 4.11 dargestellt.

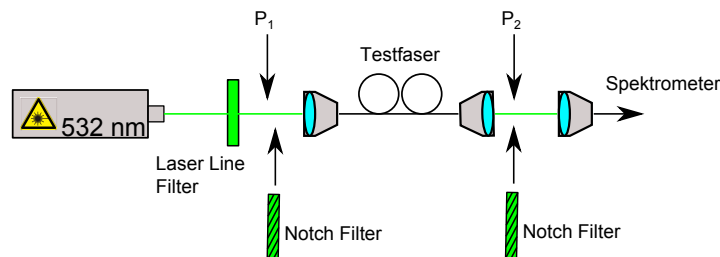


Abbildung 4.11: Aufbau des Versuchs zur Bestimmung der Leistungsabhängigkeit der Faserfluoreszenz. Die Anregungsleistung in der Testfaser (SM600) ist P_2 . Durch Subtraktion eines Spektrums mit dem Notchfilter hinter und eines Spektrums mit dem Notchfilter vor der Teststrecke lässt sich die in der Teststrecke angeregte Faserfluoreszenz quantifizieren.

Dabei werden die Spektren der Faserfluoreszenz bei unterschiedlichen Leistungen P_2 aufgenommen und miteinander verglichen. Ein Laser-Line Filter gewährleistet, dass der Laserstrahl monochromatisch in die Testfaser eingekoppelt wird. Das Spektrum erhält man durch Subtraktion zweier Spektren, wobei der Notchfilter einmal hinter und einmal vor der Testfaser angebracht ist. Dadurch ist sichergestellt, dass alle Änderungen der Wellenlänge in der Testfaser verursacht werden. Da der CCD-Chip des Spektrometers bei zu hoher Intensität sättigt, wird außerdem dieses Verhalten untersucht und ausschließlich die Messungen verwendet, die deutlich unterhalb der Sättigungsintensität sind. In Abbildung 4.12 sind die aufgenommenen Spektren für Werte von 1 mW, 2 mW und 5 mW dargestellt.

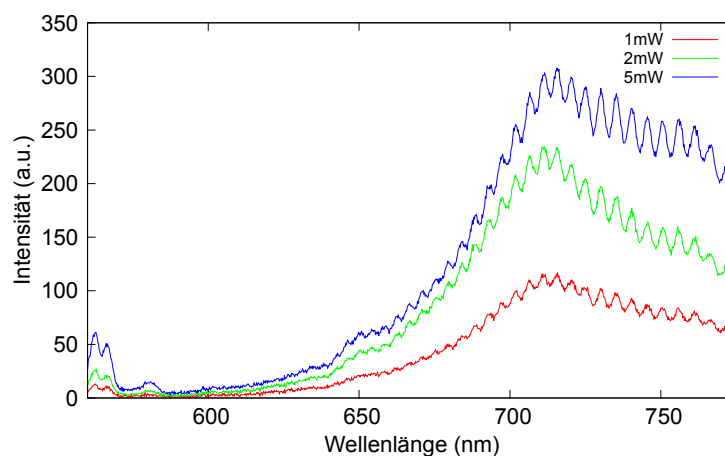


Abbildung 4.12: Leistungsabhängiges Fluoreszenzverhalten der Glasfasern.

Das Verhalten folgt keinem eindeutigen Muster. Während der Anstieg von 1 mW auf

4.5 Notwendige Optimierungen für eine faserdetektierte Einzelphotonenemission 65

2 mW annähernd zu einer Verdoppelung der Intensität des Spektrums führt, ist die Intensität des Spektrums bei der 5 mW Messung zu gering für einen linearen Verlauf. Mit dem beobachteten Verhalten ist eine Reduzierung der Faserfluoreszenz relativ zur NV-Fluoreszenz schwierig. Da auch das NV-Zentrum sättigt ist es keine Option eine möglichst hohe Anregungsleistung zu verwenden. Bei niedrigen Leistungen ist kein nichtlineares Verhalten der intrinsischen Faserfluoreszenz zu beobachten, das zu einem besseren Signal-zu-Rausch Verhältnis führen könnte.

Ein erster Schritt, der zur Verringerung der Faserfluoreszenz unternommen werden konnte ist die Verwendung einer Freiluftstrecke mit einem Notchfilter. Diese befindet sich in einem Abstand von 20 cm von der Fasertaille und dient dazu, die Strecke in der sich der Anregungslaser in der Glasfaser ausbreitet so kurz wie möglich zu halten.

Mit der vorgestellten Methode konnte die Kopplung der Emissionsmode von NV-Zentren an die geführte Mode einer *getaperten* optischen Faser gezeigt werden. Für die Realisierung einer fasergekoppelten Einzelphotonenquelle wird in Zukunft ein neuer Aufbau verwendet, der von dem hier beschriebenen abweicht.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden die optischen Eigenschaften von NV-Zentren in Diamant Nanokristallen hinsichtlich ihrer Verwendung als Einzelphotonenquelle untersucht. Durch die Charakterisierung des Probenmaterials konnte die typische NV-Fluoreszenz durch die Aufnahme eines Spektrums, der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung, polarisations- und leistungsabhängiger Messungen, sowie durch die Bestimmung der spontanen Lebensdauer des angeregten Zustands eines NV-Zentrums nachgewiesen werden. Außerdem wurde die Kopplung der Emissionsmode der NV-Fluoreszenz an die geführte Mode einer *getaperten* optischen Nanofaser für ein Multi-NV-Zentrum durch die Aufnahme eines faserdetektierten Spektrums verifiziert und hinsichtlich der beobachteten Besonderheiten untersucht. Wie in Kapitel 4 ausführlich beschrieben, ist für die Kopplung der NV-Emissionsmode an die geführte Mode einer Nanofaser eine Methode notwendig, die Diamant Nanokristalle in das evaneszente Feld der optischen Faser zu bringen. Zu diesem Zweck sollen zukünftige Experimente in einem separaten Aufbau durchgeführt werden, in dem ein Konfokalmikroskop und ein Rasterkraftmikroskop (AFM) kombiniert werden. Das AFM bietet neben den Mikroskopeigenschaften die Möglichkeit, einzelne Nanokristalle zu positionieren, indem der Nanodiamant von einem planaren Substrat mit der AFM-Spitze aufgenommen und anschließend z.B. auf die Fasertaille einer *getaperten* optischen Faser übertragen wird. Dadurch ist die Positionierung einzelner, ausgewählter Nanodiamanten möglich, die genau ein NV-Zentrum enthalten. Ein großer Vorteil dieser Methode ist, dass Eigenschaften wie die spontane Lebensdauer des angeregten Zustands zunächst auf einem Glassubstrat ermittelt und mit dem Wert auf der optischen Faser verglichen werden können. Das Funktionsprinzip des kombinierten Aufbaus ist in Abbildung 5.1 skizziert.

Ein erstes Experiment das mit dem AFM durchgeführt werden kann, ist der Vergleich von zwei Mikroskopaufnahmen der gleichen Probe, wobei ein erster Scan mit dem Konfokalmikroskop und ein zweiter mit dem AFM durchgeführt werden. Während das Konfokalmikroskop die Fluoreszenz der NV-Zentren im Scanbereich detektiert, liefert das AFM ein Höhenprofil der Probe auf dem alle Nanokristalle zu sehen sind. Für die Messung wird ein planares Glassubstrat verwendet, auf dem durch Lithographie ein Goldgitter mit

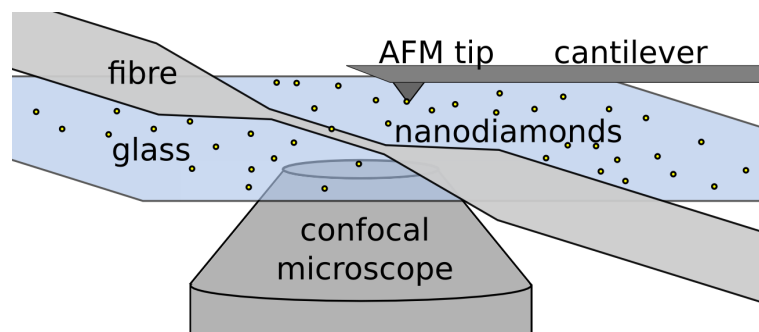
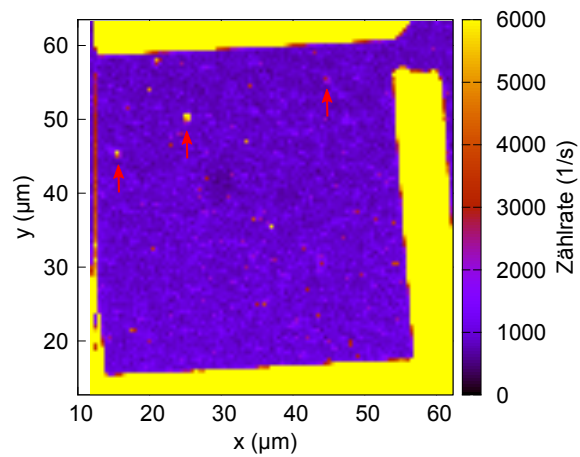


Abbildung 5.1: Funktionsprinzip der Positionierung von Nanodiamanten auf Nanofasern mithilfe eines Rasterkraftmikroskops (AFM). Der Nanokristall wird mit der AFM-Spitze aufgenommen und auf die optische Faser übertragen.

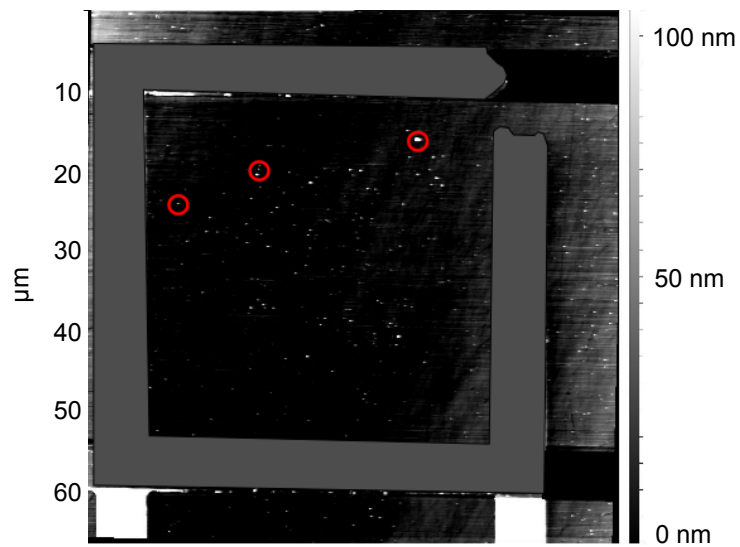
einer Gitterkonstante von $50 \mu\text{m}$ aufgedampft wurde. Als Scanbereich dient ein Eckfeld des Gitters, damit der Bereich beider Scans identisch ist. Die beiden Aufnahmen sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Der konfokale Scan zeigt mehrere leuchtende Punkte, von denen drei als NV-Zentren identifiziert wurden (rote Pfeile). Die anderen Punkte erhöhter Zählrate verschwinden bei einem erneuten Scan und sind somit vermutlich auf Staubpartikel oder andere Verunreinigungen zurückzuführen. Der Scan mit dem AFM zeigt zahlreiche Erhöhungen mit einer Größe zwischen 10 und 100 nm. Um diese Erhöhungen zu identifizieren wird ein planares Substrat, auf dem sich keine Diamantnanokristalle befinden mit dem AFM gescannt und mit der ersten Aufnahme verglichen. Da die Belegung auf dieser Referenzprobe deutlich geringer ist, kann angenommen werden, dass ein Großteil der entsprechenden Punkte im AFM-Scan auf Diamantnanokristalle zurückzuführen ist. Legt man beide Aufnahmen übereinander fällt auf, dass die drei NV-Zentren des konfokalen Scans auch auf der AFM Aufnahme vorhanden sind (rote Kreise). Dies bietet einen Ausgangspunkt für die Manipulation der Nanokristalle mit der AFM-Spitze. Eine wichtige Erkenntnis der Messung ist außerdem, dass nur ein kleiner Prozentsatz der Diamantnanokristalle NV-Zentren beinhaltet.

In Zukunft wird das AFM und das Konfokalmikroskop so betrieben, dass die Verwendung eines Goldgitters nicht mehr erforderlich ist. Erste Versuche zeigen, dass die Position beider Scans im neuen Aufbau identisch gewählt werden kann. Als nächster Schritt soll die Position der Diamantnanokristalle mit der AFM-Spitze verändert und schließlich eine Übertragung auf eine Nanofaser realisiert werden. Auf diese Weise soll die Kopplung zwischen NV-Fluoreszenz und Nanofaser weiter untersucht und vereinfacht werden. Durch die Lösung der nun bekannten Probleme soll mit dem neuen Aufbau eine effiziente, fasergekoppelte Einzelphotonenquelle betrieben und weitergehend untersucht werden.

Neben der Kopplung der NV-Fluoreszenz an die Mode einer *getaperten* optischen Faser, kommen für zukünftige Experimente auch andere Wellenleiterstrukturen in Frage, die in unserer Gruppe bereits hinsichtlich ihrer Verwendbarkeit überprüft werden. Dazu gehören neben *getaperten* Wellenleitern, die sich auf einem Substrat befinden auch plasmonische Strukturen [49]. All diese Systeme eignen sich hervorragend zur Realisierung einer kompakten und effizienten Einzelphotonenquelle, die für viele Anwendungen benötigt wird.



(a) konfokaler Scan



(b) AFM Scan

Abbildung 5.2: Vergleich eines AFM Scans und eines konfokalen Scans auf derselben Probe. Die drei roten Pfeile bzw. Kreise markieren konfokal detektierte NV-Zentren.

Anhang A

A.1 Herstellung *getaperter* Glasfasern

(vgl. [37]) Die Herstellung *getaperter* optischer Fasern geschieht durch Ziehen einer Einmodenfasern über einer Flamme, die das Glas zum schmelzen bringt. Für die selbst hergestellten Mikrofasern wird dazu eine Butan-Flamme verwendet, wohingegen für die Nanofasern eine Wasserstoff-Flamme verwendet wird, da diese weniger Rückstände verursacht. Die Faser wird innerhalb eines Bereichs $L(x)$, der heiße Zone genannt wird, auf die Schmelztemperatur erhitzt und ist außerhalb dieses Bereichs starr. x ist dabei die Länge um die die Faser bereits gezogen wurde. $L(x)$ kann im allgemeinen Fall also variiert werden, aber nie schneller als $\frac{dL}{dx} = 1$. Es wird angenommen, dass die Faser sobald sie die heiße Zone verlässt instantan abkühlt und erstarrt, wodurch ein Teil des Übergangsbereich gebildet wird. Die Breite der Fasertaille l_w entspricht zu jedem Zeitpunkt der Breite der heißen Zone

$$l_w(t) = L(t). \quad (\text{A.1})$$

Deshalb ist die Breite der *taper* Region der fertigen Faser gleich der Breite der Flamme am Ende des Vorgangs. Für die Berechnung des *fiber waist* r_w und den Verlauf des Übergangsbereichs $r(z)$ sind zwei Gleichungen von besonderer Bedeutung. Die erste sagt aus, dass das Volumen der Faser stets erhalten ist

$$\pi (r_w + \delta r_w)^2 (L + \delta x) = \pi r_w^2 L. \quad (\text{A.2})$$

Für den Grenzwert $\delta t \rightarrow 0$ wird daraus die Differentialgleichung

$$\frac{dr_w}{dx} = -\frac{r_w}{2L}, \quad (\text{A.3})$$

die Volumengesetz genannt wird. Die zweite Gleichung ist eine Aussage über die Breite des Übergangsbereichs $2z$ (auf beiden Seiten des *taper*) in Abhängigkeit der gezogenen Strecke x , die durch

$$2z = x + L_0 - L(x) \quad (\text{A.4})$$

gegeben ist und Distanzgesetz genannt wird, da die finale Breite $2z$ gleich der gezogenen Strecke der Faser ist. Aus diesen Bedingungen ergeben sich durch Integration des Volumengesetzes die relevanten Parameter r_w , l_w , $r(z)$ und z_0 für den Fall einer konstanten heißen Zone $L(x) = L_0 = \text{const}$

$$r_w = r_0 e^{-\frac{x_0}{2L_0}} \quad (\text{A.5})$$

$$l_w = L_0 \quad (\text{A.6})$$

$$r(z) = r_0 e^{-\frac{z}{L_0}} \quad (\text{A.7})$$

$$z_0 = \frac{x_0}{2}. \quad (\text{A.8})$$

A.2 Chemische Eigenschaften von Nanodiamanten

Die verwendeten Nanodiamanten sind durch das Mahlen eines größeren Mikrodiamanten entstanden. Da die Diamanten entlang einer Gitterebene brechen sind die resultierenden Nanokristalle in der Regel nicht kugelförmig, sondern haben die Form länglicher Splitter. Bei dem Vorgang entstehen auch sp^2 -hybridisierte Graphitschichten, die sich bevorzugt an der Oberfläche der Nanokristalle anlagern. Diese führen zu Bindungen mit unterschiedlichen sauerstoff- und wasserstoffhaltigen Oberflächengruppen, die wiederum Bindungen miteinander eingehen können und auf diese Weise Nanokristall-Agglomerate bilden. Eine Lösung stellt die Oxidation der Diamanten dar. Durch Anwendung oxidativer Säuren lässt sich eine homogene Oberflächenstruktur erreichen (Abbildung A.1(a)). Diese Methode wurde bei den Diamantsuspensionen ND2 und ND3 angewendet.

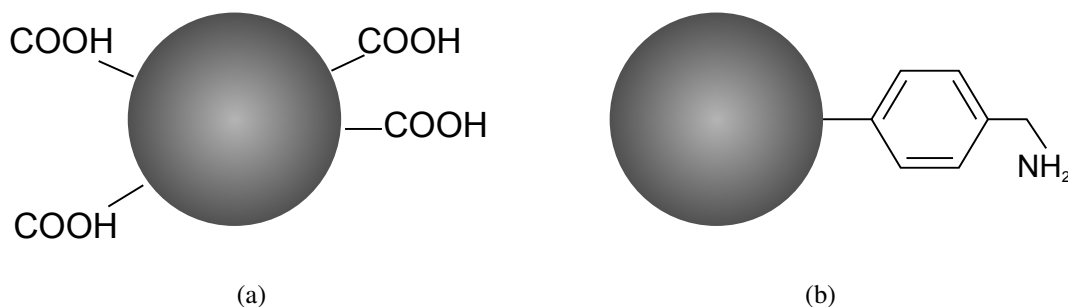


Abbildung A.1: Oberflächenstruktur oxidierter (a) und aminfunktionalisierter (b) Diamant Nanokristalle.

Graphit, das sich nicht auf der Oberfläche eines Nanokristalls befindet kann außerdem

durch die Verwendung einer Zentrifuge separiert und abpipettiert werden. Auf diese Weise wurde die Diamantsuspension ND3 gereinigt.

Eine weitere Diamantsuspension ND4, die in dieser Arbeit noch nicht verwendet wurde, besteht aus aminfunktionalisierten Diamant Nanokristallen (Abbildung A.1(b)). Die Oberflächenstruktur, die aus Benzylamingruppen besteht, ist dabei so gewählt, dass eine gute Haftung der Nanopartikel an *getaperten* optischen Fasern gewährleistet ist. Das bietet zusätzliche Möglichkeiten für zukünftige Experimente.

A.3 Präparation der planaren Substrate

Die Präparation der planaren Substrate findet im Reinraum statt, um Verunreinigungen zu vermeiden. Dazu wird zunächst das Suprasilplättchen mit einem Diamantschneider auf die benötigte Größe zurechtgeschnitten. Die Reinigung der Suprasil-Gläschen geschieht mit zwei prozentiger Hellmanex-Lösung. Dazu wird Hellmanex und Wasser in einem Becherglas gemischt, das Suprasil-Gläschen in das Becherglas gelegt und bei 65°C sowie maximaler Leistung für 20 Minuten im Ultraschallbad gereinigt. Da auf diese Weise ausschließlich die Oberseite des Substrates ausreichend gereinigt wird, kann alternativ ein Uhrglas verwendet werden, um eine spätere Verwechslung der beiden Seiten auszuschließen. Die gereinigten Suprasil-Gläschen werden mit DI-Wasser abgespült und mit Stickstoff trockengeblasen.

Das Polymer Polyvinylalkohol (PVA) liegt in einer Lösung in Wasser (Konzentration 0,5 %) vor. Damit es gleichmäßig in der Lösung verteilt ist, wird die Flasche ca. 1 Minute ins Ultraschallbad gestellt und die Lösung anschließend bei 1000 rpm mit einem Magnetrührer für 10 Minuten gerührt. Dabei ist darauf zu achten, dass sich keine Bläschen bilden, die die weitere Vorgehensweise beeinträchtigen würden.

Die Diamantsuspension (ND1 und ND2) liegen in einer wässrigen Lösung mit einer Konzentration von $0,2 \frac{\text{g}}{100 \text{ ml}}$ vor. Diese wird nach einigen Minuten im Ultraschallbad mit DI-Wasser verdünnt (Verhältnis 1 : 100) und 900 ml der verdünnten Diamantsuspension mit 40 ml PVA vermischt. Für die Diamantsuspension ND3 (Ausgangskonzentration $0,1 \frac{\text{g}}{100 \text{ ml}}$) ist eine Verdünnung der Ausgangslösung auf 0,2 % nötig, da die Anzahl der Nanokristalle mit NV-Zentren deutlich höher ist.

Das Aufbringen der Nanokristalle geschieht mithilfe der Lackschleuder. Dazu wird das gereinigte Suprasil-Gläschen auf die Lackschleuder gelegt, die Diamantsuspension auf das Substrat pipettiert und bei 2000 rpm für 4 Minuten aufgeschleudert. Dabei ist darauf zu achten, dass das gesamte Substrat ausreichend mit der Flüssigkeit benetzt ist. Die fertige Probe kann in den Aufbau montiert und gescannt werden. Eine Übersicht der verwendeten Proben ist in der nachfolgenden Tabelle zu finden.

Probe	Diamantsuspension	Diamantkonzentration (% w/v)	NV-Zentren
A	ND1	$2 \cdot 10^{-3}$	NV1, NV2, NV3, NV4
B	ND1	$2 \cdot 10^{-3}$	NV5
C	ND3	$2 \cdot 10^{-4}$	MNV1
D	ND2	$2 \cdot 10^{-3}$	NV6, NV7

A.4 Präparation der Nanofasern

Im Gegensatz zu den planaren Substraten müssen die Nanofasern direkt im Aufbau mit den Nanokristallen versehen werden. Das liegt daran, dass die Diamanten ausschließlich in einem wenige hundert μm umfassenden Bereich auf die Fasertaille aufgebracht werden sollen und dieser mit dem Scanbereich der Piezos übereinstimmen muss. Zur Erzeugung kleiner Tropfen der Diamantsuspension wird eine Spritze verwendet an deren Kanüle eine abgebrochene Mikrofaser befestigt ist. Die Mikrofaserspitze wird dazu in Hellmanex (2%) im Ultraschallbad gereinigt und mit Epoxidharzkleber auf die Kanüle geklebt. Damit sich wenige Nanodiamanten in einem Tropfen befinden sind starke Verdünnungen der Ausgangslösungen (ND1, ND2: $0,2 \frac{\text{g}}{100 \text{ ml}}$; ND3: $0,1 \frac{\text{g}}{100 \text{ ml}}$) notwendig. Für ND3 eignen sich Verdünnungen von 1 : 100.000 bis 1 : 5.000.000 und für ND2 werden Verdünnungen von 1 : 10.000 bis 1 : 500.000 verwendet. Bei besonders niedrigen Konzentrationen werden in der Regel mehrere Versuche benötigt, bis sich Diamant Nanokristalle an der Faser anlagern und NV-Zentren in Scans identifiziert werden können. ND1 zeigt eine wesentlich schlechtere Haftung an optischen Nanofasern und eignet sich deshalb nur begrenzt. Die erzeugten Tropfen haben schließlich Durchmesser zwischen $100 \mu\text{m}$ und $1000 \mu\text{m}$. Zur Präparation der Nanofaser NF1 wurde eine 1 : 5000000-Verdünnung von ND3 verwendet, wobei der Tropfen einen Durchmesser von $800 \mu\text{m}$ hatte. Nanofaser NF2 hingegen wurde mit einer 1 : 500000-Verdünnung der Diamantsuspension ND2 und einem Tropfendurchmesser von $100 \mu\text{m}$ präpariert. Bei beiden optischen Fasern waren wenige Versuche nötig um NV-Zentren auf der Fasertaille zu identifizieren.

A.5 Kalibrierung des Spektrometers

Zur Kalibrierung des Gitterspektrometers wird eine Kalibrationslampe (Avantes AvaLight-CAL-Neon) verwendet. Diese emittiert Licht bei diskreten Wellenlängen und kann direkt an die optische Faser, die vom Aufbau zum Spektrometer führt angeschlossen werden. Zur Kalibrierung wird ein Spektrum der Linien bekannter Wellenlänge aufgenommen und eine lineare Funktion zur Umrechnung der Bildpunkte der CCD-Kamera (PCO Sensicam) auf die entsprechende Wellenlänge verwendet. Diese Funktion ist in Abbildung A.2 dargestellt.

Für quantitative Messungen ist eine Untersuchung des Sättigungsverhaltens des CCD-Chips notwendig. Dieses wurde für Licht eines Helium-Neon Lasers ($\lambda = 632,7 \text{ nm}$)

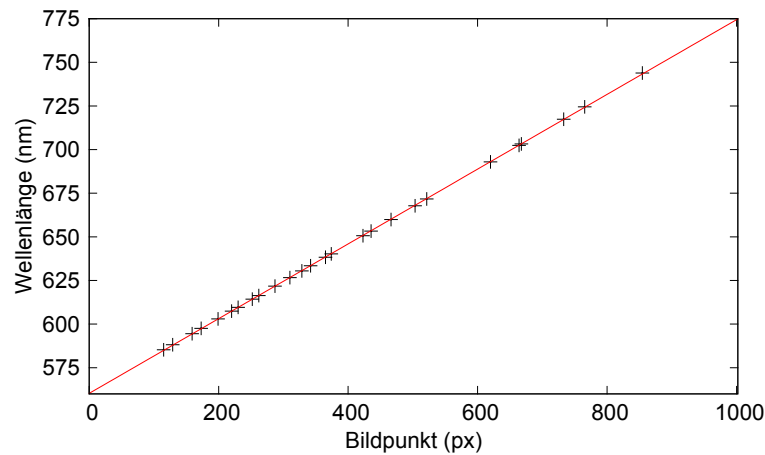


Abbildung A.2: Kalibrierung des Spektrometers.

ermittelt. Dazu wird die Laserleistung durch zwei aufeinanderfolgende Polarisatoren variiert und die in eine Glasfaser eingekoppelte Leistung mit einem *Powermeter* gemessen. Durch die Verwendung eines Graufilters (OD5) wird die Laserleistung anschließend abgeschwächt und ein Spektrum aufgenommen. Die Intensität des zentralen Peaks bei 632,7 nm wird anschließend gegen die gemessene Leistung aufgetragen. Auf diese Weise erhält man den Sättigungsverlauf des CCD-Chips der in Abbildung A.3 dargestellt ist. Die eingezeichnete Kurve ist ein Fit der Messpunkte mit der Funktion

$$I(P) = \frac{I_{\infty} P}{P_{\text{sat}} + P} + cP, \quad (\text{A.9})$$

mit den Fitparametern I_{∞} , P_{sat} und c . Während der Aufnahme von Spektren ist stets darauf zu achten, dass die Intensität innerhalb des linearen Bereichs ist.

A.6 Bestimmung der Laserleistung

Zur Messung der Anregungsleistung wird ausgenutzt, dass ein kleiner Teil des Lasers den dichroitischen Strahlteiler transmittiert (Größenordnung 1%). Dieser transmittierte Strahl wird von einem Goldspiegel abgelenkt, abgeschwächt (OD 1,6) und mit einer Linse kurzer Brennweite ($f = 3\text{cm}$) auf eine Photodiode fokussiert. Die Photospannung ist dabei proportional zur Anregungsleistung $U_M \propto P$ mit einer Proportionalitätskonstante von $U/P = 3,244 \frac{\text{V}}{\text{mW}}$. Allerdings ändert sich die Justage häufiger und somit ist die Verwendung unterschiedlicher Konstanten notwendig. Bei der Verwendung der Photodiode ist zu beachten, dass die transmittierte Leistung sehr stark von der Polarisation des Lasers abhängt. Für unterschiedliche Polarisierungen sind unterschiedliche Eichungen der Photodiode zu verwenden. Eine Eichung der Photodiode ist in Abbildung A.4 zu finden. Dafür wird für unterschiedliche Anregungslaserleistungen die Leistung mit dem *Powermeter*

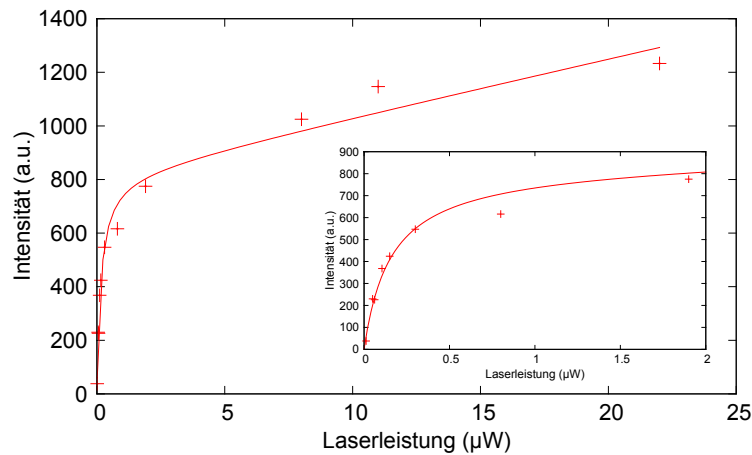


Abbildung A.3: Sättigungsverhalten des CCD-Chips für Beleuchtung mit Licht der Wellenlänge 632,7 nm. Das Inset zeigt einen vergrößerten Ausschnitt. Durch unterschiedliche Schärpen der Linien für andere Wellenlängen kann das Verhalten leicht variieren.

zwischen dem dichroitischen Strahlteiler und dem Mikroskopobjektiv und die zugehörige Photodiodenspannung gemessen. Dabei ist eine lineare Abhängigkeit zu beobachten, wobei die Proportionalitätskonstante als Umrechnungsfaktor zwischen Diodenspannung und Laserleistung dient.

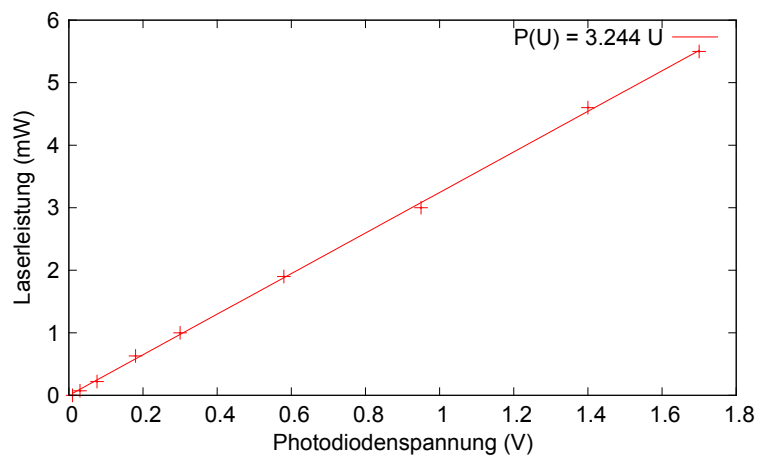


Abbildung A.4: Eichung der Photodiode für horizontale Polarisation des Anregungslaserlichts.

A.7 Polarisationskompensation

Die Glasfaser (Thorlabs 460-HP) zwischen dem Anregungslaser und dem Konfokalmikroskop ist nicht polarisationserhaltend. Um Polarisationsänderungen auszugleichen werden Polarisationskompensatoren verwendet. Das Vorgehen dabei ist wie folgt. In einem ersten Schritt wird die Polarisation des Anregungslasers auf horizontal gestellt und so

in die Glasfaser eingekoppelt. Zur Bestimmung der ausgekoppelten Polarisation dient ein Polarisator, der sich zwischen dem dichroitischen Strahlteiler und dem Mikroskopobjektiv befindet, und hinter dem der Laserstrahl auf einen Schirm abgelenkt wird. Zur Überprüfung der Polarisationserhaltung ist die Transmission des Polarisators senkrecht zur eingestellten Polarisation des Anregungslasers. Die Polarisationskompensatoren werden daraufhin in eine Position gebracht, indem die transmittierte Leistung ausgelöscht wird. In einem zweiten Schritt wird die Anregungspolarisation und der Polarisator um 45° gedreht und erneut eine Einstellung der Polarisationskompensatoren gesucht, für die die transmittierte Leistung minimal wird. Nachdem diese beiden Schritte einige Male wiederholt werden wird ein Punkt erreicht, indem bei konstanter Einstellung der Polarisationskompensatoren eine Auslöschung in beiden Basen erreicht ist. Anschließend kann die Kompensation für beliebige Anregungspolarisationen überprüft werden. In der Regel liegt die Effektivität der Auslöschung in der Größenordnung $\frac{P_1}{P_0} = 1\%$, mit der gemessenen Leistung hinter dem Polarisator für eine parallele (P_0) und eine senkrechte (P_1) Einstellung des Polarisators zur Anregungspolarisation.

Literaturverzeichnis

- [1] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Oxford University Press, Third Edition, Oxford (2001)
- [2] M. O. Scully, M. S. Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1997)
- [3] D. F. Walls et al., *Squeezed States of Light*, Nature **306**, 141 (1983)
- [4] H. J. Kimble et al., *Photon Antibunching in Resonance Fluorescence*, Phys. Rev. Lett. **39**, 141 (1977)
- [5] E. Waks et al., *Secure communication: Quantum cryptography with a photon turnstile*, Nature **420**, 762 (2002)
- [6] P. Kok et al., *Linear optical quantum computing with photonic qubits*, Rev. Mod. Phys. **79**, 135 (2007)
- [7] E. Knill et al., *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*, Nature **409**, 46 (2001)
- [8] C. Wang, *A Solid-State Single Photon Source Based on Color Centers in Diamond*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (2007)
- [9] C. Kurtsiefer et al., *Stable Solid-State Source of Single Photons*, Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000)
- [10] A. Beveratos et al., *Nonclassical radiation from diamond nanocrystals*, Phys. Rev. A **64**, 061802 (2001)
- [11] F. Jelezko et al., *Spectroscopy of Single N-V Centers in Diamond*, Single Mol. **2**, 255 (2001)
- [12] L. Knips, *NV-Zentren als Einzelphotonenquellen*, Bachelorarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München (2011)
- [13] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, *A new type of interferometer for use in radio astronomy*, Phil. Mag. **45**, 663 (1954)
- [14] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, *Correlation between photons in two coherent beams of light*, Nature **177**, 27 (1956)

- [15] A. Dräbenstedt et al., *Low-temperature microscopy and spectroscopy on single defect centers in diamond*, Phys. Rev. B **60**, 11503 (1999)
- [16] J. E. Field et al., *The Properties of Natural and Synthetic Diamond*, Academic Press, Second printing, San Diego (1997)
- [17] <http://www.docstoc.com>, *Crystallography and Processing of Monocrystalline Diamond*
- [18] P. Geithner, *Bandstruktur und Defekte der Diamant-Zinkoxid-Heterostruktur*, Dissertation, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg (2008)
- [19] N. Tsubouchi et al., *Diamond doped by hot ion implantation*, Mat. Sci. Forum **600-603**, 1353 (2009)
- [20] E. A. Ekimov et al., *Superconductivity in diamond*, Nature **428**, 542 (2004)
- [21] I. Kiflawi et al., *Nitrogen interstitials in diamond*, Phys. Rev. B **54**, 16719 (1996)
- [22] L. Rondin et al., *Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds*, Phys. Rev. B **82**, 115449 (2010)
- [23] S. Ya. Kilin et al., *Spectroscopy on single N-V defect centers in diamond: tunneling of nitrogen atoms into vacancies and fluorescence spectra*, J. Lumin. **86**, 201 (2000)
- [24] G. Davis, M. F. Hamer, *Optical Studies of the 1.945 eV Vibronic Band in Diamond*, Proc. Roy. Soc. **348**, 285 (1976)
- [25] Y. Y. Hui et al., *Polarization Modulation Spectroscopy of Single Fluorescent Nanodiamonds with Multiple Nitrogen Vacancy Centers*, J. Phys. Chem. A **115**, 1878 (2011)
- [26] R. J. Epstein et al., *Anisotropic interactions of a single spin and dark-spin spectroscopy in diamond*, Nature Phys. **1**, 94 (2005)
- [27] Thiago P. Mayer Alegre et al., *Polarization-selective excitation of nitrogen vacancy centers in diamond*, Phys. Rev. B **76**, 165205 (2007)
- [28] J. R. Rabeau, *Single Nitrogen Vacancy Centers in Chemical Vapor Deposited Diamond Nanocrystals*, Nanoletters **7**, 3433 (2007)
- [29] H. Chew et al., *Radiation and lifetimes of atoms inside dielectric particles*, Phys. Rev. A **38**, 3410 (1988)
- [30] F. A. Inam et al., *Modifikation of spontaneous emission from nanodiamond colour centres on a structured surface*, New J. Phys. **13**, 073012 (2011)
- [31] F. Jelezko et al., *Single spin states in a defect center resolved by optical spectroscopy*, Ap. Phys. Lett. **81**, 2160 (2002)
- [32] P. Delaney et al., *Spin-Polarization Mechanisms of the Nitrogen-Vacancy Center in Diamond*, Nanoletters **10**, 610 (2010)

- [33] W. A. Coish, J. Baugh et al., *Nuclear spins in nanostructures*, Phys. Status Solidi B **246**, 2203 (2009)
- [34] A. Krueger, *The structure and reactivity of nanoscale diamond*, J. Mater. Chem. **18**, 1485 (2008)
- [35] A. Krueger, *Neue Kohlenstoffmaterialien: Eine Einführung*, Teubner Verlag, erste Auflage, Wiesbaden (2007)
- [36] C. A. Christensen et al., *Trapping of ultracold atoms in a hollow-core photonic crystal fiber*, Phys. Rev. A **78**, 033429 (2008)
- [37] A. Timothy et al., *The Shape of Fiber Tapers*, J. Lightwave Technol. **10**, 432 (1992)
- [38] A. Stiebeiner et al., *Design and optimization of broadband tapered optical fibers with a nanofiber waist*, Opt. Express **18**, 22677 (2010)
- [39] F. Warcken et al., *Ultra-sensitive surface absorption spectroscopy using sub-wavelength diameter optical fibers*, Opt. Express **15**, 11952 (2007)
- [40] V. V. Klimov et al., *Spontaneous emission rate of an atom placed near a nanofiber*, Phys. Rev. A **69**, 013812 (2004)
- [41] E. Vetsch et al., *Optical interface created by laser-cooled atoms trapped in the evanescent field surrounding an optical nanofiber*, arXiv:0912.1179v1 [quant-ph] (2009)
- [42] Y. R. Chang et al., *Mass production and dynamic imaging of fluorescent nanodiamonds*, Nature Nanotech. **3**, 284 (2008)
- [43] <http://www.olympusfluoview.com/theory/resolutionintro.html>
- [44] P. W. Milonni, J. H. Eberly, *Laser Physics*, Wiley Publication, Hoboken, New Jersey (2010)
- [45] J. Volz, *Atom-Photon Entanglement*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (2006)
- [46] C. Bradac et al., *Observation and control of blinking nitrogen-vacancy centres in discrete nanodiamonds*, Nature Nanotech. **5**, 345 (2010)
- [47] K. C. Fu et al., *Observation of the Dynamic Jahn-Teller Effect in the Excited States of Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond*, Phys. Rev. Lett. **103**, 256404 (2009)
- [48] http://www.meerholz.uni-koeln.de/fileadmin/user_upload/Docs/Praktikum/Versuchsanleitungen/Skript-Lichtstreuung-A.Mueller.pdf
- [49] J. Trapp, *Design and Fabrication of a Long-range Surface Plasmon Polariton Wave Guide for near-infrared light*, Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München (2011)

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig angefertigt und nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

München, den 29. März 2012

Daniel Burchardt