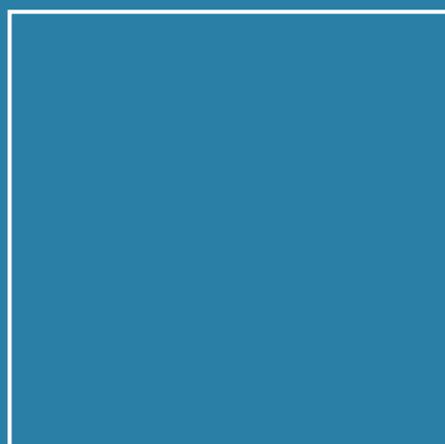




Dissertation

Beatrice Rodiek

Eignung von Einzelphotonenemittern basierend auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten als Strahlungsquelle für die Radiometrie



ISSN 0341-6712
ISBN 978-3-95606-436-4

Die Serien der PTB-Berichte:

Dosimetrie	PTB-Dos
Elektrizität	PTB-E
Elektronische Entwicklung	PTB-EW
Fertigungsmesstechnik	PTB-F
Informationstechnik	PTB-IT
Mechanik und Akustik	PTB-MA
Medizinische Messtechnik	PTB-MM
Neutronenphysik	PTB-N
Optik	PTB-Opt
Physikalische Grundlagen	PTB-PG
Radioaktivität	PTB-Ra
Thermodynamik	PTB-Th
Explosionsschutz	PTB-Ex
Chemische Physik	PTB-CP

Eingestellte Serien:

Akustik	(bis 1985)	PTB-Ak
Forschungs- und Meßreaktor Braunschweig	(bis 1988)	PTB-FMRB
Institut Berlin	(bis 1985)	PTB-IB
Mechanik	(bis 1985)	PTB-Me
Neutronendosimetrie	(bis 1988)	PTB-ND
Sicherstellung und Endlagerung radioaktiver Abfälle	(bis 1989)	PTB-SE
Wärme	(bis 3/97)	PTB-W
Literaturzusammenstellungen und Veröffentlichungshinweise	(bis 2001)	PTB-L
Akkreditierung, Qualitätsmanagement, Zertifizierung	(bis 2003)	PTB-AQZ
Atomphysik	(bis 2003)	PTB-APh
Internationale Organisation für Gesetzliches Messwesen	(bis 2003)	PTB-OIML
Thermodynamik und Explosionsschutz	(bis 2003)	PTB-ThEx
Technisch-Wissenschaftliche Dienste	(bis 2003)	PTB-TWD

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

Optik

PTB-Opt-83

Braunschweig, Dezember 2018

Beatrice Rodiek

**Eignung von Einzelphotonenemittern basierend
auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten als
Strahlungsquelle für die Radiometrie**

ISSN 0341-6712

ISBN 978-3-95606-436-4

Herausgeber:

Physikalisch-Technische Bundesanstalt

ISNI: 0000 0001 2186 1887

Presse und Öffentlichkeitsarbeit

Bundesallee 100

38116 Braunschweig

Telefon: (05 31) 592-93 21

Telefax: (05 31) 592-92 92

www.ptb.de

**Eignung von Einzelphotonenemittern basierend auf
Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten als
Strahlungsquelle für die Radiometrie**

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik der
Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades einer Doktorin

der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

von Beatrice Rodiek

aus Magdeburg

eingereicht am: 14.03.2018

Disputation am: 20.09.2018

1. Referent: Prof. Stefan Kück

2. Referent: Prof. Andreas Waag

Druckjahr: 2018

**Dissertation an der Technischen Universität Braunschweig, Fakultät für
Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik**

Kurzreferat

Einzelphotonendetektoren spielen bei einer Vielzahl von Anwendungen eine bedeutsame Rolle. Sie finden beispielsweise in der Biologie, Medizin, Astronomie, aber auch in der Quanteninformationstechnologie Anwendung [1], [2]. Dies ist bei Einzelphotonenquellen derzeit noch nicht der Fall. Hauptsächlich ist dies darauf zurück zu führen, dass es derzeit noch keine zuverlässigen und stabilen Quellen gibt, die für eine Anwendung, sei es als Photonenstandardquelle für die Radiometrie oder als Strahlungsquelle für die Quanteninformationstechnologie, geeignet sind [3].

Ziel dieser Arbeit ist daher die Untersuchung der Eignung von Einzelphotonenemittern basierend auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten als Strahlungsquelle für die Radiometrie kleiner Photonenströme. Darüber hinaus wird diskutiert, inwieweit diese Quellen als neue Standardquellen für die Metrologie und Radiometrie anwendbar sind. Dabei wird eine Einzelphotonenquelle basierend auf einer Stickstofffehlstelle im Nanodiamanten absolut charakterisiert in Hinblick auf den absoluten spektralen Photonenfluss und den absoluten spektralen Strahlungsfluss, inklusive einer detaillierten Messunsicherheitsbetrachtung. Die absolute Charakterisierung wird mit Hilfe einer ununterbrochenen Rückführungskette zu den Primärnormalen Schwarzkörperstrahler (für die relative spektrale Leistungsverteilung) und Kryoradiometer (für die optische Strahlungsleistung) durchgeführt. Weiterhin wird gezeigt, dass die in dieser Arbeit untersuchte absolute Einzelphotonenemission, abhängig von der Anregungsleistung, durchstimmbare ist im Bereich zwischen 55 fW und 75 fW, was etwa 190 000 Photonen pro Sekunde beziehungsweise 260 000 Photonen pro Sekunde entspricht.

Zudem wird die Abstrahlcharakteristik dieser Fehlstelle im Nanodiamanten untersucht, um ein besseres Verständnis für die Wechselwirkung zwischen Emitter und umgebenden Medium zu gewinnen. Hierfür werden sowohl Simulationen erstellt als auch Messungen durchgeführt, die miteinander verglichen werden. Derartige Untersuchungen sind bereits für andere Emitter durchgeführt worden, allerdings noch nicht für Stickstofffehlstellen.

Abstract

Single-photon detectors play an important role in several applications. They are used for example in the field of biology, medicine, astronomy as well as in quantum information technology [1], [2]. However, this is currently not the case for single-photon sources. The main reason for that is that nowadays there are no reliable and stable sources, which are adapted for the application as a photon standard source in the field of radiometry or as a radiation source for the quantum information technology [3].

The goal of this work is the determination of the applicability of single-photon emitters based on nitrogen-vacancy centers in nanodiamond as a radiation source for the radiometry of small photon fluxes. Furthermore, it will be discussed to what extent these sources are applicable for metrology and radiometry. For that reason, a single-photon source based on a nitrogen-vacancy center in a nanodiamond is absolutely characterized in terms of its absolute spectral photon flux as well as its absolute spectral radiant flux, including a detailed measurement uncertainty budget. The absolute characterization is realized via an unbroken traceability chain to the primary standards blackbody radiator (for the relative spectral power distribution) and cryogenic radiometer (for the optical radiant flux). It is also shown, that the absolute single-photon emission is tunable, depending on the excitation power, in the range from 55 fW to 75 fW, which corresponds to approximately 190,000 photons per second and 260,000 photons per seconds, respectively.

In addition, the characteristic of the radiation is examined in order to get a better understanding of the interaction between the emitter and the surrounding medium. For this purpose, simulations as well as measurements are realized, that are compared against each other. Such investigations were already carried out for other emitters but not thus far for nitrogen-vacancy centers.

Danksagung

Ich möchte mich in aller herzlichster Form bei allen Menschen in meinem Umkreis bedanken, die mich in meiner Arbeit unterstützt haben. Da die Form der Unterstützung sehr vielfältig war, möchte ich dies genauer beschreiben.

Ich möchte mich für die fachliche Unterstützung meiner Gutachter und Kollegen bedanken. Besonderer Dank gilt dabei meinem Doktorvater und Erstgutachter Stefan Kück und meinem Mentor Marco López, die mich sowohl in den Experimenten und in der Auswertung sowie im Schreibprozess betreut haben. Ich wurde in meiner Entwicklung als Wissenschaftlerin äußerst positiv von euch beeinflusst und mir wurden viele Möglichkeiten geboten, um mich weiter zu entwickeln. Auch möchte ich mich für die Diskussionen mit meinen beiden Zweitgutachtern Prof. Dr. Egbert Buhr und Prof. Dr. Andreas Waag bedanken. Durch ihre Denkanstöße ist meine Arbeit gereift. Natürlich möchte ich meinen Kollegen Helmuth Hofer nicht vergessen, der mich immer in der Arbeit im Labor unterstützt hat und stets einen praktischen Tipp für mich hatte. Großer Dank gilt auch den Kollegen aus der Arbeitsgruppe 4.54 sowie 4.11. Die Diskussionen mit euch haben mich immer vorangebracht und eure Hilfsbereitschaft ist einmalig.

Aber auch von Seiten meiner Familie wurde ich immer unterstützt, sowohl auf fachlicher Ebene als auch kreativ und mental. Dabei möchte ich meinen geliebten Partner Robin Ahrens hervorheben, der mich immer motiviert hat. Wir haben viel diskutiert und gemeinsam Ideen geformt. Du musstest dir viele Vorträge von mir anhören und hast viele Poster auf Übersichtlichkeit und Verständlichkeit gelesen. Ohne dich wäre ich auch nicht so zufrieden mit meinen Grafiken.

Auch meinem ungeborenen Kind gilt großer Dank. Denn du warst meine größte Motivation, die Arbeit noch vor deiner Geburt abzuschließen und du hast den Verlauf der Arbeit maßgeblich beeinflusst, da ich dich wenig Stress aussetzen wollte, musste ich alles umso besser planen.

Natürlich haben auch meinen lieben Eltern zum Gelingen der Arbeit beigetragen. Meiner Mutti Britta Rodiek danke ich für die Motivation während der gesamten Zeit. Meinem Papa Hans Rodiek danke ich für die fachlichen Diskussionen und die kritische Sicht auf alle Dinge.

Vielen Dank Ihnen und Euch!

Inhalt

Kurzreferat	i
Abstract	ii
Danksagung.....	iii
Inhalt.....	iv
Verzeichnis der Bilder.....	vi
Verzeichnis der Tabellen.....	x
Liste der Abkürzungen	x
1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen.....	3
2. 1. Einzelphotonenquellen	3
2. 1. 1. Farbzentren im Diamant	6
2. 1. 2. NV-Zentren	7
2. 2. Photonenzahlverteilung	13
2. 2. 1. Korrelationsfunktion 2. Ordnung.....	16
2. 2. 2. Korrelationsfunktion 2. Ordnung für das 3-Niveau-System.....	19
2. 3. Konfokale Mikroskopie.....	21
2. 4. Antennenstrukturen	25
2. 4. 1. Berechnung der winkelabhängigen Emissionsverteilung	25
2. 4. 2. Messung der winkelabhängigen Emissionsverteilung	29
3. Experimenteller Aufbau	33
3. 1. Einzelphotonenquellen	33
3. 2. Konfokale Messaufbau	34
3. 2. 1. Objektiv.....	39
3. 2. 2. Laser.....	39
3. 2. 3. Detektoren.....	40
3. 2. 4. Spektrometer	45
3. 2. 5. Hanbury-Brown & Twiss Interferometer (HBTI).....	46
3. 2. 6. Programmsoftware	47
4. Experimentelle Ergebnisse	49
4. 1. Kalibrierung des Spektrometers	49
4. 2. Absolute Charakterisierung	53

4. 2. 1.	Antibunching-Verhalten	54
4. 2. 2.	Spektrum	59
4. 2. 3.	Modell und Berechnung der absoluten Einzelphotonenquelle	60
4. 2. 4.	Photonenfluss	65
4. 3.	Winkelabhängige Abstrahlcharakteristik von NV-Zentren	68
4. 3. 1.	Theoretische Betrachtung der Abstrahlung des NV-Zentrums	68
4. 3. 2.	Experimentelle Abstrahlung des NV-Zentrums	71
5.	Messunsicherheitsbetrachtung	77
6.	Diskussion	83
7.	Zusammenfassung und Ausblick	89
8.	Anhang	93
	Literaturverzeichnis	99

Verzeichnis der Bilder

Abbildung 2-1: Schematische Darstellung eines 2- und 3-Niveau-Systems.	4
Abbildung 2-2: Schema der Anregung eines deterministischen Einzelphotonenemitters im 2-Niveau Energie-System gemäß [3].....	6
Abbildung 2-3: Schematische Darstellung der Kristallstruktur mit einer Stickstofffehlstelle im Diamanten [30].....	8
Abbildung 2-4: Spektrale Verteilung eines Stickstofffehlstellenzentrums im Nano- und Bulkdiamant [10].....	9
Abbildung 2-5: Spektrale Verteilung der NV-Emission bei einer Umgebungstemperatur von 10 K [27].	10
Abbildung 2-6: SEM Bilder von Nanodiamanten [25].....	11
Abbildung 2-7: Energieniveauschema eines NV-Zentrums [17]. Die Spinzustände mit $m_s = \pm 1$ sind bei Abwesenheit eines äußeren magnetischen Feldes entartet [48].	13
Abbildung 2-8: Photonenzustand für verschiedene Lichtquellen; a) thermisches Licht; b) Laserlicht; c) Einzelphotonenemission [51].....	14
Abbildung 2-9: Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Anzahl der Photonen der verschiedenen Quellen. Die durchschnittliche Photonenzahl der thermischen und der nicht-klassischen Quelle liegt bei 1; für die kohärente Lichtquelle ist die durchschnittliche Photonenzahl mit " n " betitelt und für zwei Fälle angegeben [12].	15
Abbildung 2-10: Schematische Darstellung des Hanbury-Brown and Twiss Interferometers.	18
Abbildung 2-11: 3-Niveau-System als Berechnungsgrundlage für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung nach [29].....	20
Abbildung 2-12: Aufbau konfokales Transmissionsmikroskop [26].....	22
Abbildung 2-13: Darstellung des konfokalen Mikroskopaufbaus; die gestrichelte rote und blaue Linie zeigen den Strahlengang zweier nicht-fokalen Ebenen [62].....	24
Abbildung 2-14: Schematische Darstellung des Dipols und der umgebenden Medien.....	26
Abbildung 2-15: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Bestimmung der Back Focal Plane. Der rote Strahlenverlauf zeigt den Strahlengang im konfokalen Fluoreszenzmikroskop und der blaue Strahlenverlauf den Strahlengang zur Darstellung der Back Focal Plane auf der CCD-Kamera unter Verwendung einer Bertrand-Linse bzw. Back Focal Plane Linse. Die Probe zeigt in dieser	

Darstellung den Dipol eines Nanotubes (p_{SWNT}) und ein Metallspitzendipol (p_{tip}) nach [20].	30
Abbildung 2-16: Berechnete Darstellung der Back Focal Plane für vier verschiedene Lagen des Dipols bezüglich der Grenzschicht zwischen Luft und Deckglas: a) der Dipol liegt parallel zur Grenzfläche in horizontaler Ausrichtung; b) der Dipol liegt parallel zur Grenzfläche mit vertikaler Ausrichtung; c) der Dipol steht senkrecht auf der Grenzfläche; der Dipol hat eine Kippung in 45° bezüglich der Grenzfläche und ist in der x-y-Ebene 45° ausgerichtet [21].	31
Abbildung 3-1: Schematische Darstellung der Stickstofffehlstellen-basierten Nanodiamant-Probe.	33
Abbildung 3-2: Schematische Darstellung des konfokalen Messaufbaus; Erklärung der Abkürzungen: ND – Neutraldichtefilter mit kontinuierlich einstellbarer Transmission, LL 532 – Laserlinienfilter für 532 nm, L1 und L2 – Linse 1 und Linse 2, WFL – bewegliche Linse für Weitfeld-Mikroskopie, DBS – dichroitischer Strahlteiler, FM – beweglicher Spiegel, Notch 532 – Notchfilter für 532 nm, FEL 0550 – Langpassfilter 550 nm, FES 0750 und FES 0800 – Kurzpassfilter 750 nm und 800 nm.	34
Abbildung 3-3: Fotografische Aufnahme der Einzelphotonenquelle inkl. des konfokalen Aufbaus und der NV-Probe - Rückansicht.	35
Abbildung 3-4: Fotografische Aufnahme der Einzelphotonenquelle inkl. des konfokalen Aufbaus und der NV-Probe - Frontansicht.	35
Abbildung 3-5: Fotografische Aufnahme der Diamantprobe befestigt auf den Verschiebetischen. Der Laserstrahl wird mit dem Mikroskopobjektiv auf einen Punkt der Probe fokussiert.	37
Abbildung 3-6: Aufnahme mit der sCMOS unter Verwendung der Weitfeld-Optik. Die hellen Punkte sind Emissionen aus NV-Zentren.	38
Abbildung 3-7: Fotografie des vom CMI entwickelten Detektors (LOFD) inklusive Einkoppelobjektiv und Temperaturstabilisierung.	42
Abbildung 3-8: Schematische Darstellung des LOFD (Low Optical Flux Detector) und des SIA (Switched-Integrator Amplifier) [74].	43
Abbildung 3-9: Spektrale Empfindlichkeit für die Siliciumdiode im LOFD des CMI [74].	44
Abbildung 3-10: Darstellung der Einkopplung des Fluoreszenzsignals in den LOFD.	44
Abbildung 3-11: Aufbau des Spektrometers, iHR 320 von Horiba Jobin Yvon [75].	45
Abbildung 3-12: Schematische Darstellung des Hanbury-Brown-Twiss-Interferometers.	46
Abbildung 4-1: Spektrale Bestrahlungsstärke der Wolframlampe zurückgeführt auf den Schwarzkörperstrahler [77].	50

Abbildung 4-2: Spektrum der bekannten Wolframlampe gemessen mit dem zu kalibrierenden Spektrometer.	51
Abbildung 4-3: Spektrale Bestrahlungsstärke der Wolframlampe (blaue Kurve) und Messung der Wolframlampe mit dem Spektrometer (rote Kurve).	52
Abbildung 4-4: 80 μm x 80 μm Scan der Diamantprobe <i>BRNV07</i> . Die weiß umrandete Fluoreszenz einer Stickstofffehlstelle im Nanodiamant wird im Weiteren untersucht [78].	53
Abbildung 4-5: Messung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung mit dem HBTI (Messpunkte in blau) und Fit der Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Fitkurve); die Anregungsleistung beträgt 0,29 mW nach [67].	55
Abbildung 4-6: Messdaten (blaue Punkte) und Fit für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Kurve) für eine Anregungsleistung von 0,68 mW nach [67].	57
Abbildung 4-7: Messdaten (blaue Punkte) und Fit für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Kurve) für eine Anregungsleistung von 1,055 mW nach [67].	58
Abbildung 4-8: Spektrale Verteilung des Einzelphotonenemitters.	60
Abbildung 4-9: Rückführungskette zu den Primärnormalen für die absolute Charakterisierung einer Einzelphotonenquelle basierend auf einem NV-Zentrum. Die Kästen, die für die verwendeten Geräte stehen, sind blau hinterlegt, grüne Flächen indizieren Berechnungen und eine orange Hinterlegung zeigt das Messobjekt an nach [67].	63
Abbildung 4-10: Darstellung des absoluten spektralen Photonenflusses (blaue Kurve) und des absoluten spektralen Strahlungsflusses (rote Kurve) eines NV-Zentrums [67].	64
Abbildung 4-11: Photonenfluss bzw. optische Leistung in Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Die Messpunkte (schwarze Punkte) werden von einem Fit (rote Kurve) widerspiegelt. Wird der Hintergrund (blaue Kurve) von dem Fit abgezogen, erhält man den Photonenfluss ohne Hintergrundstrahlung (grüne Kurve) nach [67].	66
Abbildung 4-12: Berechnete Dipolabstrahlung („Signal“, elektrische Komponente) für den Winkelbereich von 0° bis 180° (blaue Kurve). Der Bereich von 0° bis 90° beschreibt die Abstrahlung in das Deckglas und der Bereich von 90° bis 180° stellt die Abstrahlung in Luft dar. In grün ist die Einfangeffizienz dargestellt, sie ist die Integration über die berechnete Dipolabstrahlung. Der berechnete Öffnungswinkel des Mikroskopobjektivs ist in Form der orangen senkrechten Linie illustriert nach [67].	69
Abbildung 4-13: a) Darstellung der elektrischen Dipolabstrahlung in Polarkoordinaten. Die Darstellung umfasst den gesamten Winkelbereich von 0° bis 360°. Die Intensität der Emission ist entlang der r-Koordinate aufgetragen. Zur Verdeutlichung des Betrachtungswinkels und der Lage des Dipols ist in b)	

bezüglich der Berechnung die Position der Probe dargestellt und c) zeigt eine Nahaufnahme der Emission im Bereich der Grenzschicht. Die Dipolorientierung ist in b) und c) mit roten doppelseitigen Pfeilen veranschaulicht. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu.	71
Abbildung 4-14: Aufnahme der Abstrahlcharakteristik eines NV-Zentrums durch das Back Focal Plane-Verfahren. Das kreisförmige Gebilde, dessen Ausmaße durch den doppelseitigen weißen Pfeil angedeutet werden, entspricht dem 2-fachen Öffnungswinkel des Mikroskop-objektivs. Die Intensität der Emission ist farbcodiert dargestellt. Entlang der weißen Linie sind Untersuchungen zum Intensitätsverlauf vorgenommen worden nach [81].	72
Abbildung 4-15: Vergleich der gemessenen Intensitätswerte (grüne Kurve) in Abhängigkeit vom Winkel mit den berechneten Werten (blaue Kurve). Die Werte der Messung und der Berechnung sind für den Bereich des doppelten Öffnungswinkels dargestellt nach [81].	74
Abbildung 5-1: Ishikawa-Diagramm [83] zur Darstellung der Einflussgrößen für die Messunsicherheitsbestimmung für den absoluten spektralen Photonenfluss.	78
Abbildung 5-2: Spektraler Photonenfluss in Abhängigkeit von der Wellenlänge (blaue Kurve) und dazugehörige Standard-Messunsicherheit (rotes Unsicherheitsband) nach [81].	82
Abbildung 8-1: Linearitätsmessung des Hintergrunds gemessen mit dem SPAD an zwei verschiedenen Punkten auf der Probe BRNV07.	93
Abbildung 8-2: Horizontal zur Grenzfläche befindlicher Dipol ohne räumlichen Abstand. Die blaue Kurve zeigt die Abstrahlcharakteristik für einen Azimutwinkel von 90° und die schwarze Kurve entspricht einem Azimutwinkel von 0°	94
Abbildung 8-3: Dipol, der sich horizontal zur Grenzfläche befindet für drei verschiedene Abstände (0 nm, 50 nm und 100 nm) zur Grenzfläche. Die Graphen unterscheiden sich lediglich in dem Winkelbereich zwischen 41° und 90° , für kleinere und größere Winkel sind die Abstrahlungsverteilungen gleich.	95
Abbildung 8-4: Dipol, der sich senkrecht zur Grenzfläche befindet für drei verschiedene Abstände (0 nm, 50 nm und 100 nm) zur Grenzfläche. Die Graphen unterscheiden sich lediglich in dem Winkelbereich zwischen 41° und 90° , für kleinere und größere Winkel sind die Abstrahlungsverteilungen gleich.	96
Abbildung 8-5: Spektrale Verbreiterung hervorgerufen durch Auflösung im Spektrometer. Die grüne Kurve zeigt das Spektrum eines Lasers aufgenommen mit Gitter 1 und einem Eingangsspalt von 0,01 mm. Die orange Kurve zeigt den selben spektralen Verlauf aufgenommen mit Gitter 3 bei einem Eingangsspalt von 1 mm. Die spektrale Verschiebung soll an dieser Stelle ignoriert werden, da diese in der Korrektur der Wellenlänge berücksichtigt wird.	97

Verzeichnis der Tabellen

Tabelle 1:	Transmission des Mikroskopobjektivs CFI Plan Apochromat Lambda 100x [69].	39
Tabelle 2:	Tabellarische Übersicht der Messunsicherheitsbetrachtung für den absoluten spektralen Photonenfluss.	81

Liste der Abkürzungen

a. u.	Arbitrary Unit
BFP	Back Focal Plane
bzgl.	bezüglich
ca.	circa
CMI	Ceský Metrologický Institut
HBTI	Hanbury-Brown und Twiss Interferometer
LOFD	Low Optical Flux Detector
MPI	Max Planck Institut
NA	Numerische Apertur
NV-Zentrum	Stickstofffehlstellenzentrum (a. d. engl. „Nitrogen-Vacancy Center“)
PI	Physik Instrumente
QKD	Quantum Key Distribution
SIA	Switched Integrated Amplifier
sog.	sogenannten
SPAD	Single Photon Avalanche Diode
u. a.	unter anderem
z.B.	zum Beispiel
ZPL	Nullphononenlinie (a. d. engl. „Zero Phonon Line“)

Teilergebnisse der vorliegenden Arbeit wurden veröffentlicht in:

- Beatrice Rodiek, Marco López, Helmuth Hofer, Stefan Kück, “The absolutely characterized nitrogen vacancy center-based single-photon source – measurement uncertainty of photon flux and angular emission properties,” *Journal of Physics Conference Series* 972 (2018)
- Beatrice Rodiek, Marco López, Helmuth Hofer, Geiland Porrovecchio, Marek Smid, Xiao-Liu Chu, Stephan Gotzinger, Vahid Sandoghdar, Sarah Lindner, Christoph Becher, Stefan Kück, "Experimental realization of an absolute single-photon source based on a single nitrogen vacancy center in a nanodiamond," *Optica* 4, 71-76 (2017) *Journal*
- Geiland Porrovecchio, Marek Smid, Marco López, Helmuth Hofer, Beatrice Rodiek Stefan Kück, " Comparison at the sub-100 fW optical power level of calibrating a single-photon detector using a high-sensitive, low-noise silicon photodiode and the double attenuator technique," *Metrologia* 53, 1115-1122 (2016)
- Beatrice Rodiek, Marco López, Helmuth Hofer, Xiao-Liu Chu, Stephan Göttinger and Stefan Kück, “Characterisation of nitrogen-vacancy based single-photon sources,” *DGaO Proceedings* 2016

1. Einleitung

Im Zentrum dieser Arbeit stehen Einzelphotonenquellen basierend auf Stickstoff-basierten Fehlstellen in Nanodiamanten. Generell besitzen Einzelphotonenquellen ein breites Anwendungsfeld. Sie sind beispielweise interessant für die Biologie, für die Realisierung von Quantencomputer, für die fundamentale Quantenmechanik [2], aber auch für Quantenmetrologie [2], [4] und Quantenkommunikation [4]. Grund hierfür ist, dass eine ideale Einzelphotonenquelle nur einzelne Photonen aussendet und dabei die Mehr-Photonen-Aussendung unterdrückt wird. Sie gelten somit als vielversprechende Kandidaten, um als Standardquelle in der Quantenmetrologie, Quantenkommunikation und in den Grundlagen der Quantenmechanik verwendet zu werden [4].

In der Metrologie gibt es Bestrebungen, die SI-Basiseinheit Candela über Einzelphotonenzählung [5], [6], [7] neu zu realisieren. Sie sind aber auch relevant und wichtig für die Quantenkryptographie [8], [9], [12], bzw. genauer für die Quantum Key Distribution [7], [8], (Quantenschlüsselverteilung [11]), denn die Sicherheit in der Quantenkryptographie und somit auch der Quanten-Schlüsselübertragung beruht auf den Gesetzen der Quantenmechanik [8], [11], da ein einzelner Quantenzustand nicht kopiert werden kann [9]. Das Auslesen (d.h. eine Messung) führt zum Kollaps der Wellenfunktion [12], welche nicht rekonstruiert werden kann („*No-Cloning Theorem*“). Damit wird zwar nicht das Abhören verhindert, aber es wird ein Abhörer detektiert [12], [13]. In der Praxis werden derzeit abgeschwächte Laser verwendet, die immer eine Wahrscheinlichkeit haben, mehr als ein Photon auszusenden. Daher werden die mittleren Photonenzahlen klein gehalten, was wiederum zu leeren Pulsen führt und einer damit verbundenen schlechten Übertragungseffizienz [14]. Das bedeutet, dass weder die Emission von einzelnen Photonen nacheinander noch eine hohe Bit-Rate garantiert werden kann [9]. Die Verwendung von Einzelphotonenquellen führt daher zu einer Verbesserung der Sicherheit in der Quantenkryptographie [3], [15].

Hinsichtlich der Quantencomputer stellt die Verwendung von Einzelphotonenquellen den Vorteil dar, dass die Prozessorleistung deutlich erhöht werden kann, denn Photonen sind potentiell als Qubits geeignet [8].

Generell lässt sich sagen, dass die Einzelphotonen-Metrologie benötigt wird [3]. Denn momentan ist die Entwicklung der Einzelphotonendetektoren der Entwicklung der Einzelphotonen-

quellen voraus [8]. Alle Bemühungen hinsichtlich der Entwicklung von Einzelphotonenelementen benötigt die Unterstützung aus der Einzelphotonenmetrologie. Dabei ist ein Ziel eine Verbindung zwischen der Einzelphotonen-Radiometrie, in der es möglich ist, die Photonen ab-zuzählen, und der konventionellen Radiometrie zu schaffen [3].

Die Stickstoff-basierten Fehlstellen in Nanodiamanten sind vielversprechende Kandidaten als Einzelphotonenquelle für verschiedene Anwendungen, da sie bei Raumtemperatur photostabil sind und auch nach mehrstündiger Bestrahlung mit Laserlicht nicht ausbleichen [9]. Sie werden bereits als Biomarker [16] verwendet und sind als Lichtquelle für hochauflösende „*Scanning-Probe-Microscopy*“ geplant [10].

Ein weiteres Ziel in der Verwendung von Einzelphotonenquellen ist Realisierung eines Quantenstandards für die Radiometrie und Photometrie, um die (spektrale) Strahlungsleistung und die Lichtstärke basierend auf einer Photonen-zählung zu realisieren [17]. Denn wie auch schon bei der Quantenkryptographie kommt heutzutage bei der Kalibrierung von Einzelphotonendetektoren ein stark abgeschwächter Laser zum Einsatz [2]. Allerdings treten dabei zwei Probleme zum Vorschein: Zum einen hat ein abgeschwächter Laser immer eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine Photonenemission von mehr als einem Photon. Dies ist problematisch, da ein Einzelphotonendetektor nicht den Photostrom detektiert wie ein analoger Detektor, sondern lediglich das Ereignis des Eintreffens eines Photons in Form eines Pulses. Kommen jedoch zwei oder mehr Photonen gleichzeitig bzw. innerhalb der Totzeit des Detektors an, so wird vom Einzelphotonendetektor lediglich das Ereignis detektiert. Es gibt also nur einen Puls unabhängig von der Anzahl der ankommenden Photonen [2]. Zum anderen hat der Detektor eine gewisse Totzeit, in der keine Photonen detektiert werden können. Dies hat zur Folge, dass die Kalibrierung der Detektionseffizienz immer fehlerbehaftet ist und die Detektionseffizienz mit zunehmender Photonenzahl abnimmt. Unter Verwendung einer idealen Einzelphotonenquelle wird diese Fehlerquelle vermieden und die Detektionseffizienz ist unabhängig von der Anzahl der Photonen.

Ein Schritt in Richtung einer Standard-Einzelphotonenquelle soll mit dieser Arbeit unter der Verwendung von Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten gemacht werden. Es soll eine absolute Quelle realisiert werden, deren Emission bekannt und rückführbar ist. Zudem soll die winkel-abhängige Abstrahlcharakteristik untersucht werden, wie dies bereits für andere Quellen durchgeführt worden ist [18]–[21].

2. Theoretische Grundlagen

Im Zentrum dieser Arbeit stehen Einzelphotonenquellen basierend auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten. Wie der Name Einzelphotonenquelle schon beinhaltet, liegt der Kern in der Realisierung einer Quelle, die nur einzelne Photonen aussendet. Ein Photon ist nach Referenz [3] wie folgt definiert: Ein Photon ist eine elementare Anregung einer einzelnen Mode eines quantisierten elektromagnetischen Feldes.

Photonen werden als masselose bosonische Quanten von elektromagnetischer Strahlung angesehen [17], die die Energie $E_{ph} = h\nu$ tragen [3], [17]. Das Photon hatte seine erste Erwähnung 1900 von Planck, 1905 von Einstein und 1923 von Compton [3]. Der Name Photon wurde durch Lewis 1926 geprägt [3] und stammt vom griechischen Word „*phos*“ ab, welches die Bedeutung *Licht* hat [17].

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen sowie der Stand der Forschung dargestellt, die für die durchgeführten Experimente relevant sind.

2.1. Einzelphotonenquellen

Die Notwendigkeit und möglichen Anwendungsgebiete von Einzelphotonenquellen wurden bereits in der Einleitung dargestellt. Allerdings wurde bisher noch nicht darauf eingegangen, was eine ideale Einzelphotonenquelle ausmacht, welchen Anforderungen sie gerecht werden sollte und welche Arten von Einzelphotonenquelle unterschieden werden können. Dies soll an dieser Stelle genauer ausgeführt werden.

Die Anforderungen an einen Einzelphotonenemitter hängen von der Anwendung ab [13]. Die Grundidee eines solchen Emitters besteht aus einer Quelle, die als Antwort auf einen Trigger, der sowohl optisch als auch elektrisch sein kann, exakt ein Photon emittiert [15]. Die Emission der einzelnen Photonen soll zu einer beliebigen Zeit geschehen, die der Benutzer festlegt. Dabei beträgt die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines einzelnen Photons 100 % und die Wahrscheinlichkeit für eine Multi-Photon-Emission 0 %. Die ausgesendeten Photonen sollen im Idealfall ununterscheidbar sein [3], [13]. Um die Wiederholungsrate möglichst hoch zu gestalten [3], sollte die Lebensdauer des angeregten Zustandes möglichst klein sein [22]. Das bedeutet,

dass die Lebensdauer in der Größenordnung zwischen Pikosekunden und Nanosekunden liegen sollte [13], da eine hohe Wiederholungsrate für die praktische Anwendung benötigt wird [17]. Prinzipiell ist ein 2-Niveau-System gegenüber Systemen die ein oder mehrere zusätzliche Energieniveaus ausweisen zu bevorzugen, insbesondere, wenn es zur Ausbildung eines metastabilen Zustands, dem sog. „*Shelving State*“, kommt, siehe Abbildung 2-1. [13]. Eine lange Lebensdauer im Shelving State führt zu Erniedrigung in der Einzelphotonen-Emissionsrate und verursacht Photon-Bunching [3]. Unter „*Bunching*“ werden Intensitätsfluktuationen verstanden, die sich als Häufung von Photonen äußern [23].

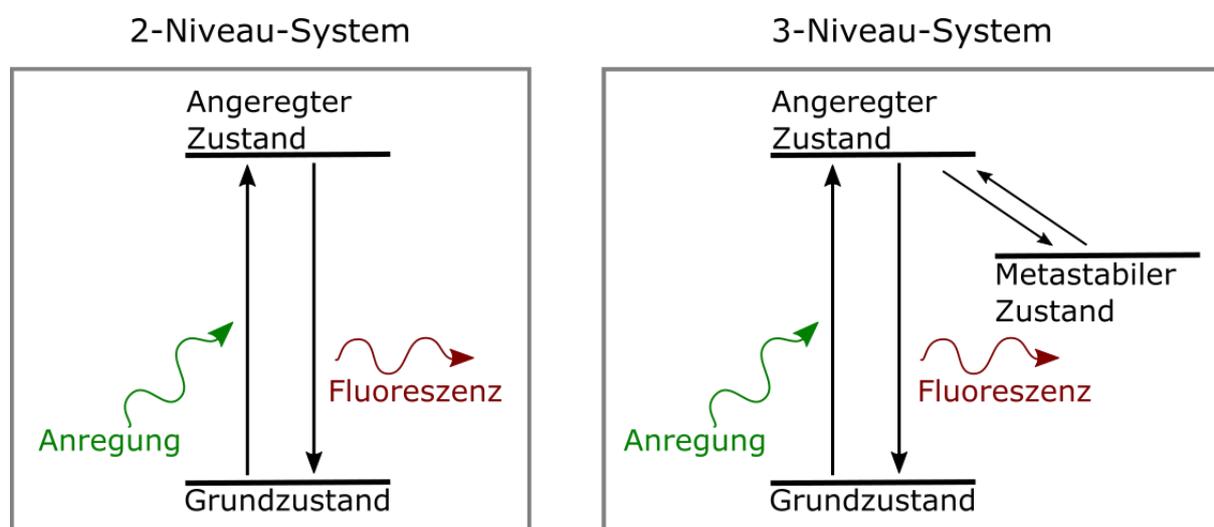


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung eines 2- und 3-Niveau-Systems.

Zudem sollte ein idealer Emittier die Photonen stabil über einen möglichst langen Zeitraum effizient emittieren [14], [13], [24], wobei das Emissionsspektrum schmal [14], [13], [24] und polarisiert sein sollte [13]. Idealerweise sollten die Kosten für Anschaffung und Betrieb einer solchen Quelle gering sein [14] und der emittierte spektrale Bereich sollte kompatibel sein mit dem spektralen Bereich der verwendeten optischen Fasern und Einzelphotonendetektoren [24]. Allgemein gilt für eine ideale Quelle, dass die emittierte (spektrale) Strahlungsleistung Φ gleich ist zu der Photonenenergie $h\nu$ multipliziert mit der Anzahl an emittierten Photonen pro Zeiteinheit n/t [17]:

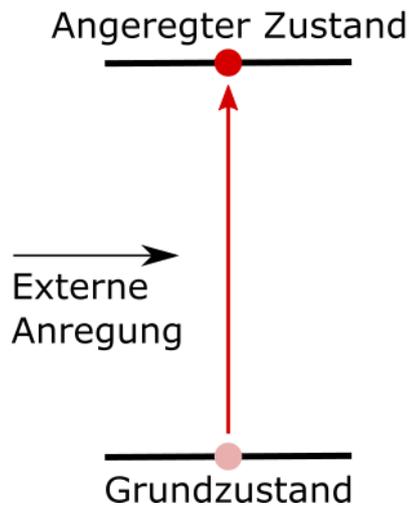
$$\phi = \frac{n}{t} h\nu . \quad (1)$$

Eine solche ideale Einzelphotonenquelle, die alle Kriterien erfüllt, steht in der realen Welt nicht zur Verfügung [3], [24] und Abweichungen zwischen Ideal und Realität müssen für die Gestaltung des Experiments berücksichtigt werden [3]. Dementsprechend werden je nach Anwendungsgebiet wichtige Kriterien an einen Einzelphotonenemitter herausgestellt. So ist zum Beispiel eine hohe Wiederholungsrate und Polarisation wichtig für Anwendungen in der Quantenkryptographie [13] während für praktische Anwendungen das Arbeiten bei Raumtemperatur, Photostabilität und eine hohe Helligkeit notwendig sind [25].

Hinsichtlich der Einteilung verschiedener Einzelphotonenquellen wird grundsätzlich zwischen 2 Arten von Quellen [1], den deterministischen und probabilistischen Quellen, unterschieden [3]. Die deterministischen Quellen bestehen aus Einzel-Quantenemittern [1], dazu gehören Farbzentren, Quanten Dots (QD), einzelne Atome, einzelne Ionen und Einzel-Moleküle [3], [17]. Zum Teil sind diese Quellen „*on demand*“ [3], was bedeutet, dass diese einzelne Photonen deterministisch aussenden. Zu den probabilistischen Quellen gehören die sogenannten „*heralded*“ Einzelphotonenquellen. Dabei handelt es sich um korrelierte Photonenpaare, die in einem nichtlinearen Medium erzeugt worden sind [1]. Zu dieser Gruppe von Quellen gehören Photonenpaare, die aus „*parametrischer Downconversion*“ (PDC) im Kristall und Wellenleiter, sowie aus „*Four-Wave-Form-Mixing*“ in einer optischer Faser (FWM) erzeugt werden [3].

In der vorliegenden Arbeit wird mit Einzelphotonenquellen basierend auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten gearbeitet. Diese sogenannten NV-Zentren („*Nitrogen-Vacancy Center*“) sind Fehlstellen in Diamant und gehören zu der Klasse der deterministischen Quellen. Grundsätzlich gilt für die Anregung solcher Quellen (und deterministischen Quellen allgemein [3]) im einfachsten Fall ein 2-Niveau-Energie-System [3], [5]. Dabei wird durch den Trigger ein Elektron auf einen angeregten Zustand angehoben und die Quelle emittiert genau ein Photon nach einer Zeit, die der Lebensdauer entspricht [15]. Dies ist schematisch in Abbildung 2-2 dargestellt.

1. Anregung:



2. Emission:

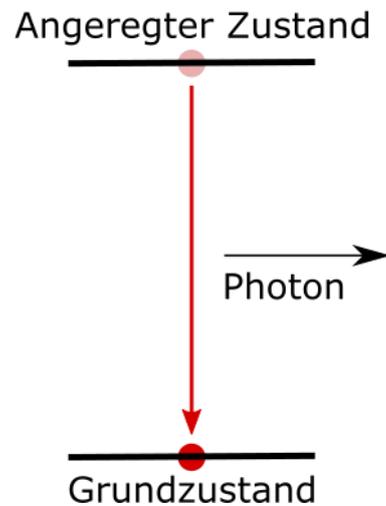


Abbildung 2-2: Schema der Anregung eines deterministischen Einzelphotonenemitters im 2-Niveau Energie-System gemäß [3].

2. 1. 1. Farbzentren im Diamant

Diamanten im Allgemeinen zeichnen sich durch ihre thermische Leitfähigkeit, ihre Härte [10], [26] und hohe Debye-Temperatur [10] aus. Sie haben eine Bandlücke von 5,5 eV [14], [27] und eine Ramanlinie bei 1332 cm^{-1} [14], [28]. Zudem wurden im Diamanten bei einer Anregung mit 532 nm Ein- und Zwei-Phonon-Raman-Streuungen bei 573 nm und zwischen 600 nm und 620 nm gefunden [29]. Es gibt natürliche und künstlich hergestellte Diamanten, die in der Regel Farbzentren aufweisen. Farbzentren beschreiben Punktdefekte in der Kristallstruktur, die in der Lage sind, sichtbares Licht zu absorbieren. Dabei handelt es sich üblicher Weise um Gitterfehler oder chemische Verunreinigungen [14]. Da der Diamant eine große Bandlücke aufweist, besitzen Punktdefekte die Möglichkeit gebundene elektronische Zustände innerhalb dieser Bandlücke zu besetzen, was sich wiederum in optischen Übergängen äußert [14]. Zudem wird durch die starke Kristallbindung die Diffusion der Punktdefekte innerhalb des Diamanten verhindert [14]. Dominante Verunreinigungen in Diamant sind durch Bor- und Stickstoffatome hervorgerufen [14].

Ein großer Vorteil von Farbzentren im Diamant liegt in der vorwiegend photostabilen Emission und dem Arbeiten bei Raumtemperatur. Aufgrund dieses Vorteils wurden sie intensiv erforscht [13].

Es hat sich gezeigt, dass infolge der großen Bandlücke sehr viele Farbzentren möglich sind [14] und es wurden eine Vielzahl optischer aktiver Defekte festgestellt [3], [10], [24], [27], [30]. Viele der Farbzentren haben ihre spektrale Emission im sichtbaren und infraroten Bereich [27]. Einige mögliche Farbzentren sollen an dieser Stelle genannt werden, da diese in der Literatur häufig vertreten sind. So spielen neben den Stickstoff- und Silicium-Fehlstellen, Nickelbasierte Farbzentren (NE8), Nickel-Silicium-Komplexe und Chrombasierte Farbzentren eine Rolle bei der Entwicklung von Einzelphotonenquellen im Diamanten [17], [25]. Da die Zentren deutliche Unterschiede aufweisen, soll im Folgenden nur auf die Stickstofffehlstellen (NV-Zentren) genauer eingegangen werden, da diese für die vorliegende Arbeit relevant sind.

2. 1. 2. NV-Zentren

1957 wurde von Kaiser und Bond festgestellt, dass Stickstoff als häufige Unreinheit in Diamant auftritt [8]. Im Jahr 1997 wurde von Gruber et al. [31] die Fluoreszenz einzelner NV-Zentren erstmalig mit einem konfokalen Mikroskop bei Raumtemperatur beobachtet. Die NV-Zentren haben ein breites Anwendungsgebiet, das auch von ihrer Anzahl abhängt. In der Biologie sind beispielsweise mehrere Fehlstellen in einem Nanodiamant von Interesse, da diese das Potential für hochpräzise Magnetfeldmessung und Temperaturmessung haben [32], während einzelne Stickstofffehlstellen im Diamanten u.a. Kandidaten für Festkörper-Qubits sind [32]. In der Regel werden für Versuche an NV-Zentren synthetische Diamanten vom Typ 1b verwendet, die gewöhnlich gleichverteilt Stickstoffunreinheiten aufweisen [17], [29]. Die beiden gängigsten Methoden zur Herstellung von Stickstofffehlstellen-basierten Einzelphotonenquellen sind entweder durch Wachstumsprozesse oder durch Ionenimplantation [25].

Generell ist ein NV-Zentrum wie folgt aufgebaut: In der Diamantstruktur aus Kohlenstoffatomen hat sich ein substitutionelles Stickstoffatom inklusive benachbarter Fehlstelle angelagert [17], [27], [10], [33], [29]. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 2-3 veranschaulicht.

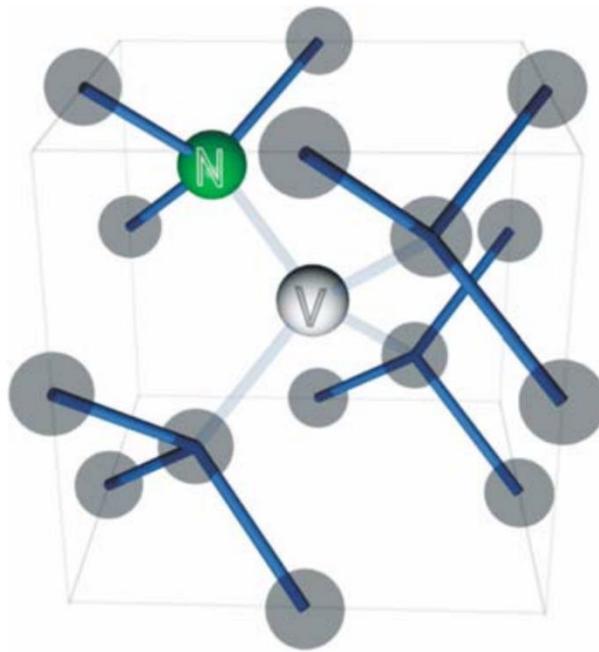


Abbildung 2-3: Schematische Darstellung der Kristallstruktur mit einer Stickstofffehlstelle im Diamanten [30].

Die optischen Eigenschaften der Stickstofffehlstellen im Nanodiamanten können beschrieben werden als klassischer elektrischer Dipol, der sich innerhalb eines verlustfreien dielektrischen Partikels befindet [34]. Durch die Anregung eines einzelnen Dipols kann nur ein Photon zu einer Zeit emittiert werden [35]. Denn wird das Zentrum bzw. der Dipol durch Anregung auf ein höheres Energieniveau angeregt, verweilt in dem angeregten Zustand eine gewisse Zeit (Lebensdauer) und relaxiert anschließend zurück in den Grundzustand. Erst nach Erreichen des Grundzustandes kann der Dipol wieder angeregt werden. Die Anregung erfolgt typischerweise mit Laserlicht der Wellenlänge 532 nm [36].

Der Großteil der Versuche an Diamantfehlstellen wurde an NV-Zentren durchgeführt [1], [25]. Dies ist auf die Vorteile der Stickstofffehlstellenzentren zurückzuführen. Ein großer Nutzen besteht im Arbeiten bei Raumtemperatur [13], [32], [36]. Das NV-Zentrum ist eine stabile Quelle zur Einzelphotonenerzeugung [32], die zuverlässig einzelne Photonen emittiert. Generell ist die Stickstofffehlstelle photostabil [3], [12], [37], [38], d.h. sie bleicht über längere Anregungszeiträume nicht aus (keine „*Bleaching*“-Effekte). Im Gegensatz dazu bleichen beispielsweise organische Moleküle bei Raumtemperatur nach etwa 10^9 Emissionen aus und sind dann

unbrauchbar [29]. Das Zentrum ist auch bei hohen Temperaturen (500 °C) stabil in der Photonenemission [24] und es ist möglich aufgrund der starken elektronischen Übergänge einzelne Zentren zu detektieren [10].

Wie bereits herausgestellt wurde, ist bisher keine perfekte Einzelphotonenquelle bekannt. Dementsprechend weisen Stickstofffehlstellen im Diamant auch Nachteile auf. Dazu gehört, dass die Emission der NV-Zentren in der Regel nicht ununterscheidbar ist [3] bzw. nur unter großem Aufwand und mit geringerer Effizienz zu realisieren ist [39]. Sie weisen ein sehr breites Emissionsspektrum im Bereich von etwa 600nm bis 850nm auf, siehe Abbildung 2-4 [3], [8], [25], [38], was auf eine starke Elektron-Phonon-Kopplung zurückzuführen ist [24].

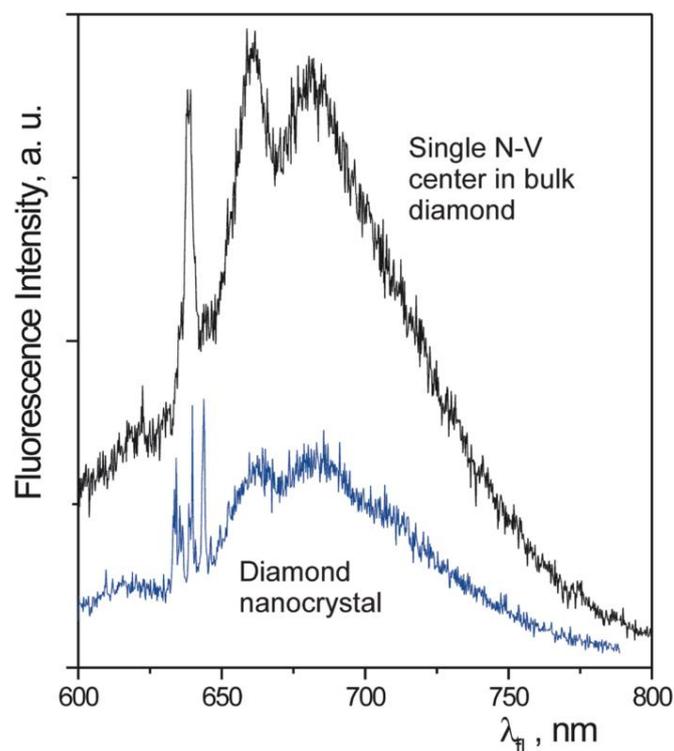


Abbildung 2-4: Spektrale Verteilung eines Stickstofffehlstellenzentrums im Nano- und Bulkdiamant [10].

Die starken Phononenseitenbanden treten selbst bei kryogenen Temperaturen auf [27], [40]. In Abbildung 2-5 zeigen sich die Phononenseitenbanden sowohl des NV^- als auch des NV^0 -Zentrums (NV^- , NV^0 : Erklärung folgt) bei 10 K.

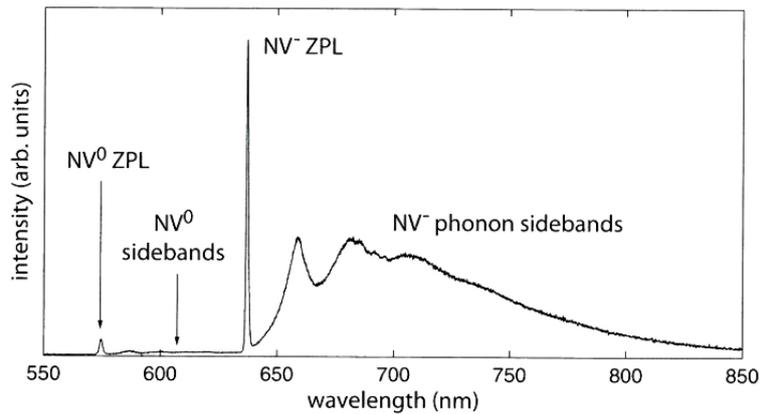


Abbildung 2-5: Spektrale Verteilung der NV-Emission bei einer Umgebungstemperatur von 10 K [27].

Bei NV-Zentren im Diamant müssen 2 Dinge unterschieden werden. Zum einen betrifft dies die Größe des umgebenden Diamanten. Dabei wird zwischen Nanodiamant und „Bulk“-Diamant unterschieden, wobei Nanodiamanten in der Regel kleiner als 250 nm sind. Die zweite Unterscheidung betrifft den Ladungszustand des NV-Zentrum, hier wird zwischen NV^0 und NV^- unterschieden. Auf beide Unterscheidungskriterien soll im Folgenden genauer eingegangen werden.

Die Größe des umgebenden Diamanten hat Auswirkungen auf den Brechungsindex, welcher seinerseits die Emission des NV-Zentrums beeinflusst. Der Brechungsindex von Diamant beträgt $n = 2,43$ (bei 534 nm [41]). Dies führt in der Regel zu einer geringen Einfangeffizienz der Emission aufgrund des großen Anteils der Emission, die wegen der inneren Totalreflexion den Diamanten nicht verlassen kann [3]. Für Farbzentren in Nanodiamanten, die etwa 40 nm groß sind, ist die Brechung nicht relevant, da die Ausdehnungen des Nanodiamanten im Sub-Wellenlängenbereich liegen [3], sie sind also kleiner als die Anregungswellenlänge. Es kann davon ausgegangen werden, dass die interne totale Reflexion bei Nanodiamantgrößen bis 100 nm umgangen werden kann [8]. Eine Aufnahme zweier Nanodiamanten mittels Rasterelektronenmikroskop (SEM) ist in Abbildung 2-6 dargestellt.

Auf die mittlere Lebensdauer des NV-Zentrums wirkt sich die Größe des umgebenden Diamanten insofern aus, als das Fehlstellen in Nanodiamanten eine längere Lebensdauer aufweisen als solche im Bulkdiamanten [36]. Diese beträgt im Nanodiamanten etwa 21 ns bis 25 ns [36], [42], während sie im Bulk etwa 12 ns beträgt [36], [42]. Dies ist zurückzuführen auf den effektiven Brechungsindex, welcher umgekehrt proportional zur Lebensdauer ist [43] und abhängt vom

sogenannten „*Filling Factor*“. Der Filling Factor entspricht dabei dem Anteil der Fehlstelle zum umgebenden Medium [44], [45].

Weiterhin ist zu beobachten, dass die Helligkeit bei Nanodiamanten gleicher Größe variiert, ebenso variieren die Zerfallsraten des strahlenden und nichtstrahlenden Zerfalls [37]. Es wurde zudem festgestellt, dass die Lebensdauer unabhängig von der Anregungswellenlänge ist und dass die Variationen der Lebensdauer bei gleicher Größe auf Unterschiede im Nanodiamanten zurück zu führen sind, sie ist individuell für NV-Zentren [36]. Generell lässt sich aber auch sagen, dass die Verteilung der Lebensdauern stark durch Unreinheiten in lokaler Nähe zum Diamanten und durch Oberflächeneffekte beeinflusst wird [36].

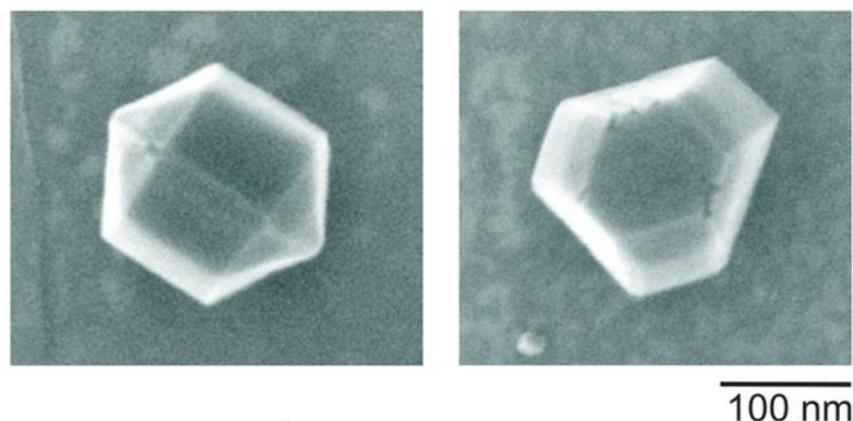


Abbildung 2-6: SEM Bilder von Nanodiamanten [25].

Bei Stickstofffehlstellen sind 2 mögliche Ladungszustände zu beobachten: der neutrale und der negative Zustand [17], welche auch als NV^0 und NV^- bezeichnet werden [13]. Die beiden Ladungszustände lassen sich anhand der Lage der Nullphononenlinie (engl. „*Zero Phonon Line*“) im Spektrum unterscheiden. Die Nullphononenlinie im neutralen Ladungszustand liegt bei ca. 575 nm [27], [46], während der Nullphononenübergang bei NV^- bei ca. 637 nm zu finden ist [17], [27]. Bei Raumtemperatur schließt sich jeweils ein etwa 120 nm breites begleitendes Phonon-gestütztes Rekombinationsband an [17]. Die verschiedenen NV-Zentren unterscheiden sich auch bezüglich ihrer mittleren Lebensdauern. Die neutralen Zentren in Nanodiamanten weisen längere Lebensdauern von bis zu 29 ns auf, während bei negative geladenen Fehlstellen eine kürzere Lebenszeit von etwa 21 ns – 25 ns zu beobachten ist [36].

Es wurde zudem ein Zusammenhang zwischen der Größe des umgebenden Nanodiamanten und dem Ladungszustand der Fehlstelle festgestellt. Es zeigte sich, dass NV-Zentren, die von einem Diamanten umgeben sind, der größer als 70 nm ist, zu ca. 90 % negativ geladen sind [47].

Außerdem konnte gezeigt werden, dass der Ladungszustand der neutral geladenen NV-Zentren durch die Anregungsleistung verändert werden kann. Bei schwachen Anregungsleistungen unter 0,5 mW verbleibt ein neutrales Zentrum neutral. Steigt die Anregungsleistung an, kann neben der NV^0 -ZPL auch die NV^- -Nullphononenlinie erscheinen. Es gibt nur wenige neutrale Zentren, die auch bei höheren Anregungen neutral bleiben [46]. Im Gegensatz dazu verbleibt ein bei geringer Anregungsleistung negativ geladenes NV-Zentrum negativ auch bei höheren Anregungsleistungen [46]. Aufgrund der möglichen Änderung des Ladungszustands und der damit verbundenen Änderung des Spektrums ist die Photostabilität von neutralen Zentren unter Vorbehalt zu sehen.

Es unterscheiden sich sowohl die Lage der Nullphononenlinie bei neutralen und negativen NV-Zentren [46] als auch die Energieniveauschemata selbst. Generell gilt zwar die Annahme, dass NV-Zentren sich über ein 3-Niveauenergie-Schema annähern lassen [3]. Allerdings spielt der dritte, metastabile Zustand, der sogenannte Shelving State, bei neutralen NV-Zentren keine wesentliche Rolle [46], während dieser Zustand für die Beschreibung von NV^- deutliche Auswirkungen hat [46]. Somit kann NV^0 durch ein 2-Niveauenergie-Schema angenähert werden und NV^- durch ein 3-Niveauenergie-Schema [13], [36]. Für das negative NV-Zentrum muss allerdings noch ergänzt werden, dass die Beschreibung mit dem 3-Niveauenergie-Schema erst für höhere Anregung zum Tragen kommt, da der Einfluss des Shelving State mit wachsenden Anregungen stärker ausgeprägt ist [46].

Da für diese Arbeit in der Regel negativ geladene NV-Zentren verwendet werden, soll an dieser Stelle lediglich das Energieniveau-Schema von NV^- vorgestellt werden. In diesem Zustand sind Grundzustand und angeregter Zustand Triplets [8] (gilt auch für NV^0). Der angeregte 3E -Zustand und der Grundzustand 3A splitten sich in 3 Spinquantenzustände mit $m_s = \pm 1$ und 0 auf, siehe Abbildung 2-7 bei 5,6 μeV und 2,9 μeV [17]. Ein weiterer Zustand, der metastabile Zustand 1A , ist vorhanden, allerdings ist dessen genaue energetische Lage nicht bekannt [17]. Dieser Zustand äußert sich z. B. in der Erhöhung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung bzw. $g^{(2)}(\tau)$, welche im nächsten Kapitel genauer erklärt wird [17].

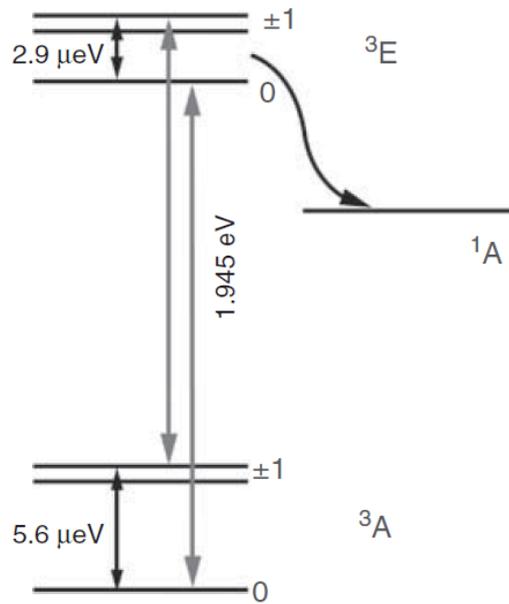


Abbildung 2-7: Energieniveauschema eines NV-Zentrums [17]. Die Spinzustände mit $m_s = \pm 1$ sind bei Abwesenheit eines äußeren magnetischen Feldes entartet [48].

2. 2. Photonenzahlverteilung

Um die statistische Natur der Photonenzahlverteilung eines Lichtfeldes fassen zu können, sind zahlreiche Experimente konzipiert worden. Alle hatten das Ziel einzelne Photonen anzahl- und zeitabhängig zu zählen. Das Resultat aus diesen Experimenten ist, dass die Statistik der Emission von der Lichtquelle abhängt [49]. Zwei Extremfälle können dabei unterschieden werden. Dies sind zum einen kohärentes Licht und zum anderen chaotisches Licht [49].

Kohärentes Licht beschreibt eine monoenergetische ebene Welle. Näherungsweise kann ein stabilisierter Laser eine solche kohärente Quelle abbilden. Thermische Quelle, wie beispielsweise eine Glühlampe zählen zu den chaotischen Lichtquellen [49].

Beim Übergang von der klassischen elektromagnetischen Welle hin zu einzelnen Photonen kann zudem eine Unterscheidung hinsichtlich einer klassischen Lichtquelle und einer nichtklassischen vorgenommen werden [50].

Während thermisches Licht einer klassischen Lichtquelle entstammt, wird das Licht aus einer Einzelphotonenquelle als nichtklassisch bezeichnet. Eine genaue Unterscheidung wird Mithilfe

der Korrelationsfunktion 2. Ordnung, siehe Kapitel 2. 2. 1. vorgenommen. Diese Funktion ermöglicht die Unterscheidung bzw. Charakterisierung von Photonenquellen [3]. Auf diese Weise kann beispielweise ein wichtiges Kriterium für Einzelphotonenquellen geprüft werden, nämlich die Unterdrückung von Zwei- oder Mehr-Photonen-Emissionen [50].

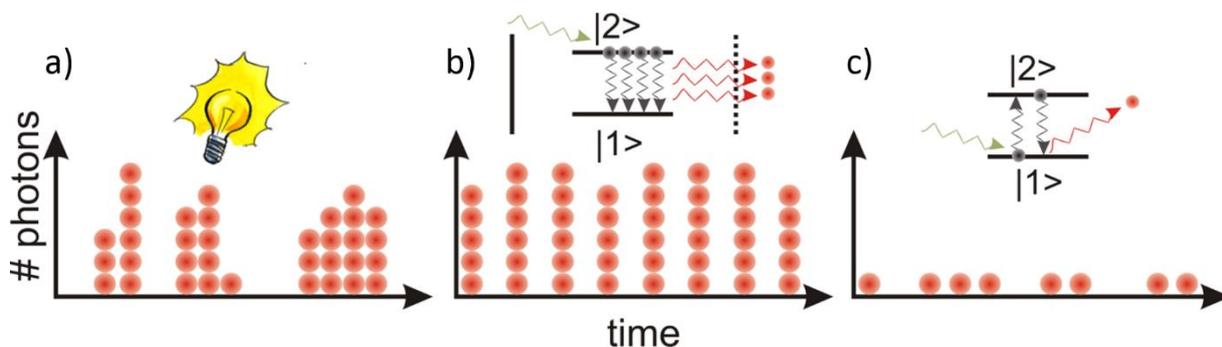


Abbildung 2-8: Photonenzahl für verschiedene Lichtquellen; a) thermisches Licht; b) Laserlicht; c) Einzelphotonenemission [51].

Eine Übersicht über die verschiedenen Photonenzählungen ist in Abbildung 2-8 dargestellt. Das thermische Licht folgt der Bose-Einstein-Verteilung [12]. Die folgende Gleichung gibt die Wahrscheinlichkeit an, n Photonen in einem Lichtfeld zu finden [23], [50]:

$$p(n) = \frac{\bar{n}^n}{(1 + \bar{n})^{1+n}}, \quad (2)$$

dabei ist \bar{n} der Mittelwert der Photonenzahl. Abbildung 2-9 zeigt, dass das Maximum dieser Verteilung bei $n = 0$ liegt, was bedeutet, dass es wahrscheinlicher ist, kein Photon zu detektieren als eine ganz bestimmte endliche Zahl von Photonen [23]. Generell ist die Photonenzahl starken Schwankungen unterworfen, was auf die Intensitätsfluktuationen zurückzuführen ist, die sich wiederum als „Photonenklumpen“ - dem sogenannten Bunching – äußern [23].

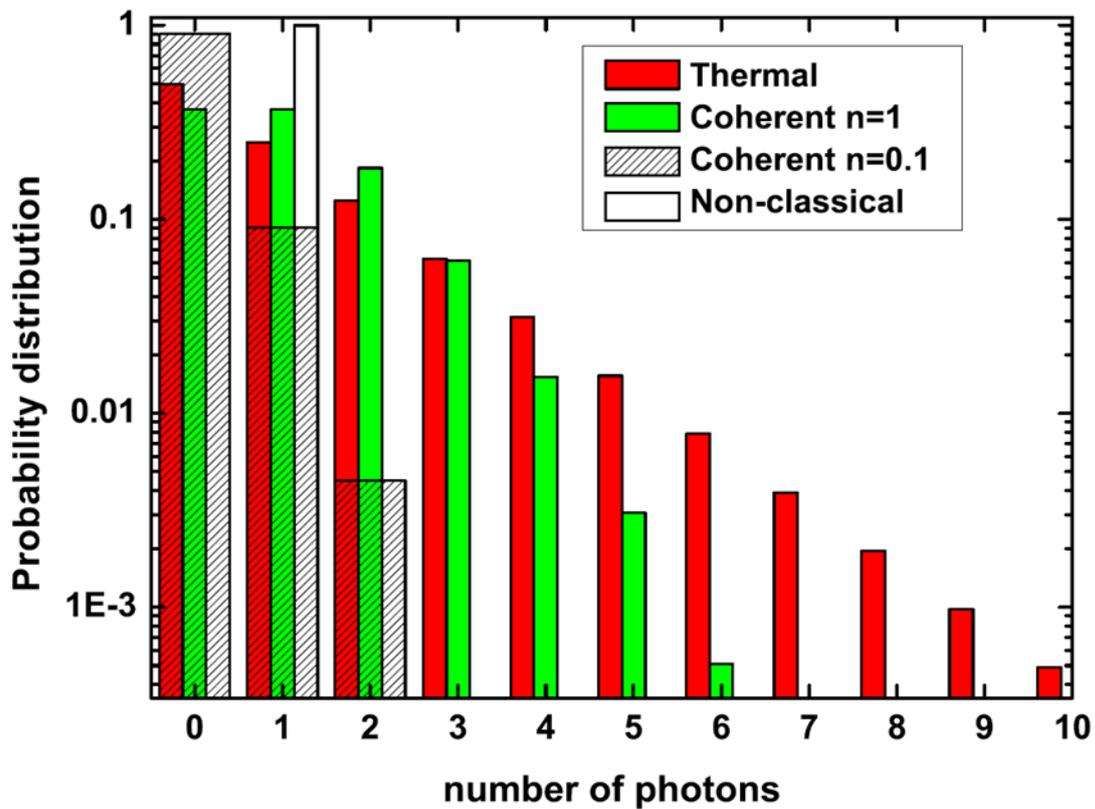


Abbildung 2-9: Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Anzahl der Photonen der verschiedenen Quellen. Die durchschnittliche Photonenanzahl der thermischen und der nicht-klassischen Quelle liegt bei 1; für die kohärente Lichtquelle ist die durchschnittliche Photonenanzahl mit "n" betitelt und für zwei Fälle angegeben [12].

Dagegen folgt das kohärente Licht, zu dem Laserlicht gezählt wird, der Poisson-Verteilung [17], [8], [12], [13], [23]. Demnach ist die Wahrscheinlichkeit für einen Erwartungswert \bar{n} n Photonen zu erhalten [8]:

$$p(n) = \frac{\bar{n}^n e^{-\bar{n}}}{n!}. \quad (3)$$

Diese Verteilung zeigt ein deutliches Maximum um den Erwartungswert, wobei die Verteilung deutlich schmäler ausgeprägt ist. Um beispielweise mit einem Laser eine möglichst geringe Mehr-Photonen-Wahrscheinlichkeit zu erzielen, werden Laser für solche Anwendungen mit durchschnittlichen Photonenrate von $\bar{n} < 0,1$ betrieben, wodurch am Häufigsten kein Photon enthalten ist [12].

Der Übergang von kohärentem Licht zum nichtklassischen Licht, welches der Sub-Poisson-Verteilung folgt [13], erfolgt über die Unterdrückung des leeren Zustands in der Poisson-Verteilung [12]. Die Verteilung wird noch schmaler ist als die der Poissonverteilung. Es werden nur einzelne Photonen bzw. eine definierte Anzahl von Photonen emittiert in einem zeitlichen Abstand τ , es kommt also zum „*Antibunching*“ [23].

2. 2. 1. Korrelationsfunktion 2. Ordnung

Zur Beschreibung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung muss zuerst geklärt werden, was unter Kohärenz (1. und 2. Ordnung) zu verstehen ist. Bei Kohärenz wird in erster Linie zwischen räumlicher und zeitlicher Kohärenz unterschieden [49]. Die Kohärenzzeit ist dabei „das durchschnittliche Zeitintervall, in der die Lichtwelle in einer vorgesehenen Weise schwingt ...“ und „je länger die Kohärenzzeit [der Strahlung], desto größer ist die zeitliche Kohärenz“ [49]. Unter der Kohärenzlänge versteht man „die [...] räumliche Ausdehnung, über die eine Lichtwelle in einer regelmäßigen, vorhersagbaren Weise oszilliert, ...“ [49].

Die Kohärenz 1. Ordnung beschreibt Interferenzmuster, die durch räumliche und zeitliche Korrelation hervorgerufen worden sind [50], während die Kohärenz 2. Ordnung die Korrelation der zeitlichen Intensität beschreibt, die sich durch die Photonenzahl zu einem bestimmten Zeitpunkt ausdrückt [50].

Die Messung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung, der sog. $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion, stellt dabei das Standardwerkzeug zur Charakterisierung von Quantenemittern und den Standard beim Einzelphotonennachweiß in der Quantenoptik dar [50]. Die $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion wird mithilfe der Anzahl der Photonen ermittelt [13], [15], [50].

Die Berechnung der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion ergibt sich aus dem Erwartungswert " $\langle \dots \rangle$ " der Intensität zu einem Zeitpunkt $I(t)$ und der zeitlich verzögerten Intensität $I(t+\tau)$ [9], [12], [13]

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t + \tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (4)$$

Für den klassischen Fall einer thermischen Lichtquelle gilt für die Intensitätskorrelationsfunktion $\langle I^2 \rangle \geq \langle I \rangle^2$ [12], [50]. Denn es gilt zum Zeitpunkt $\tau = 0$ [50]

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle I(t)^2 \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \geq 1. \quad (5)$$

Zur Betrachtung des nichtklassischen Falls, wird die klassische Größe der Intensität $I(t)$ und $I(t+\tau)$ durch Vernichtungs- und Erzeugungsoperatoren (\hat{a}^\dagger und \hat{a}) ersetzt und man erhält aus Gleichung (4) die quantenmechanische Korrelationsfunktion 2. Ordnung [50]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t+\tau)\hat{a}(t+\tau)\hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t) \rangle^2}. \quad (6)$$

Diese kann für den Fall $\tau = 0$ vereinfacht werden zu [50]

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a} \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger\hat{a} \rangle^2}. \quad (7)$$

Unter Einbeziehung der Vertauschungsrelationen $\hat{a}\hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger\hat{a} = 1$ kann Gleichung (7) wie folgt geschrieben werden [50]:

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\Delta n^2 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2}, \quad (8)$$

dabei ist Δn^2 die Varianz der Photonen ($\Delta n^2 = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2$) [50].

Die Varianz für die Verteilung des thermische Licht ergibt sich wie folgt [23], [50]:

$$\Delta n^2 = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2 = \sum P(n)n^2 - \left(\sum P(n)n \right)^2 = \bar{n} + \bar{n}^2. \quad (9)$$

Daraus kann nach Gleichung (8) die Korrelationsfunktion 2. Ordnung für eine thermische Lichtquelle zum Zeitpunkt $\tau = 0$ für beliebige n bestimmt werden [50]

$$g_{\text{klassisch}}^{(2)}(0) = 2. \quad (10)$$

Das bedeutet, dass die aufeinanderfolgenden Photonen starke Korrelationen aufweisen, was als Bunching bezeichnet wird [13], [50].

Für Licht, welches der Poissonverteilung folgt, wurde gezeigt, dass das Maximum um den Erwartungswert liegt. Die Varianz ist gleich dem Erwartungswert [23], [50]

$$\langle \hat{n} \rangle = (\Delta n)^2. \quad (11)$$

Eingesetzt in Gleichung (8) ergibt sich daraus die Korrelationsfunktion 2. Ordnung für eine kohärente Lichtquelle für beliebige Photonenzahlen n [50]:

$$g_{\text{kohärent}}^{(2)}(0) = 1. \quad (12)$$

Die Untergrenze für klassisches Licht liegt bei $g^{(2)}(0) = 1$. Dementsprechend gehört kohärentes Licht, wie beispielsweise Laserlicht, zum klassischen Licht [50].

Für Licht mit $\langle \hat{n} \rangle = n$ und n ungleich 0 ergibt sich aus Gleichung (8) [13], [15], [45]:

$$g^{(2)}(0) = \frac{n(n-1)}{n^2} = 1 - \frac{1}{n}. \quad (13)$$

Es ergeben sich Werte kleiner als die klassische Untergrenze $g^{(2)}(0) = 1$, was der Grund ist, warum solches Licht als „nichtklassisch“ bezeichnet wird [50]. Für $n = 1$ ergibt sich $g^{(2)}(0) = 0$.

Eine ideale Einzelphotonenquelle sollte genau den Wert $g^{(2)}(0) = 0$ annehmen [17], da dies der Emission von genau einem Photon entspricht. Sendet eine Quelle 2 Photonen aus, steigt der Wert auf $g^{(2)}(0) = 0,5$. Daher wird als Minimumanforderung für eine Einzelphotonenquelle ein Wert für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung gesetzt, der kleiner ist 0,5 [13].

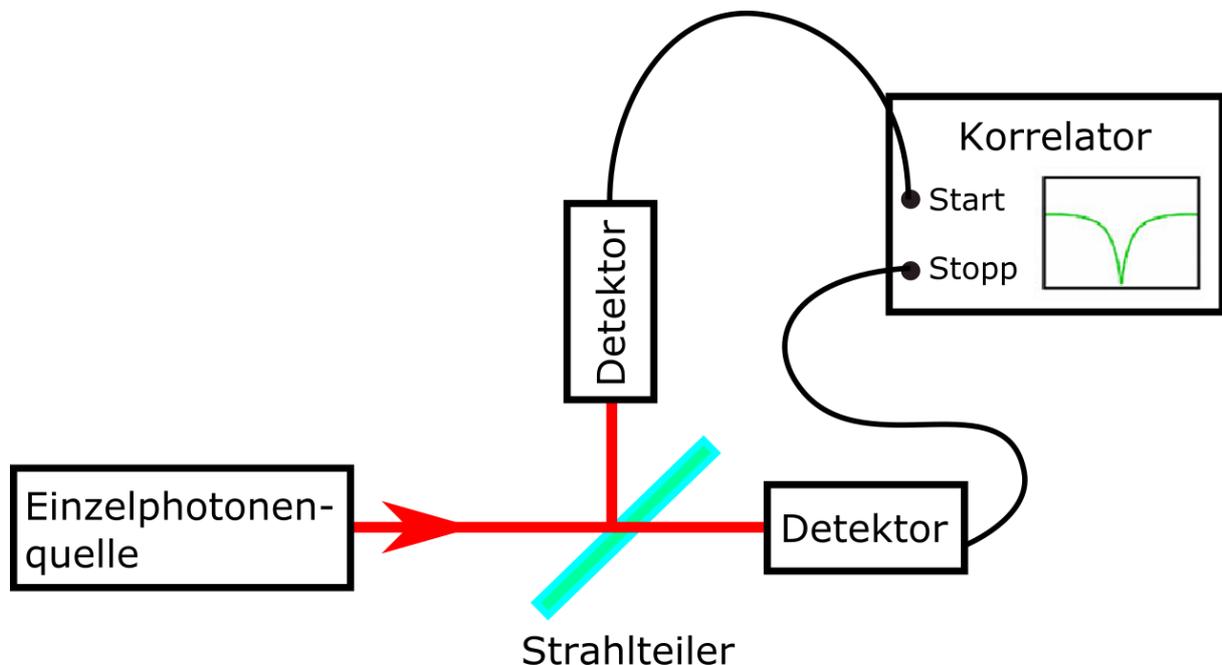


Abbildung 2-10: Schematische Darstellung des Hanbury-Brown and Twiss Interferometers.

Die Messung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung erfolgt mit dem Hanbury-Brown and Twiss Interferometer, kurz HBTI [4]. Es wurde von Hanbury-Brown und Twiss 1954 entwickelt [52] und gilt heutzutage als das Standardverfahren um Rückschlüsse auf die Photonenzustand des Lichts ziehen zu können [13]. So kann mit dem HBTI eine Aussage getroffen werden, ob es sich bei der Lichtquelle um einen klassischen oder nicht-klassischen Emitter handelt. Das Lichtfeld bestrahlt einem 50/50 Strahlteiler und wird anschließend durch 2 Detektoren detektiert [50]. Die beiden Detektoren müssen eine sehr kurze Integrationszeit aufweisen, um die Korrelationsfunktion 2. Ordnung einer Einzelphotonenquelle abbilden zu können. Einer der beiden Detektoren startet die Zeitmessung während der zweite Detektor die Messung stoppt. Die zeitlichen Abstände zwischen Start und Stopp werden über längere Zeit aufgezeichnet. Anhand dieser Daten kann dann die Korrelationsfunktion 2. Ordnung konstruiert werden. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 2-10 dargestellt.

Bei dieser Messung ist zu beachten, dass trotz einer idealen Quelle ein Wert für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung ermittelt werden kann, der größer ist als null. Dies ist auf negative Einflüsse in der Messung zurückzuführen. Ein wesentlicher Punkt stellt dabei die Hintergrundstrahlung da. Im Fall von Farbzentren in Diamant kommt der Großteil der Hintergrundstrahlung aus dem Diamanten selbst. Zudem spielen Unsicherheiten im Timing des Messaufbaus wie der Jitter eine wesentliche Rolle [53]. Der Jitter bezeichnet die zeitliche Varianz der Registrierung der Photonen im Detektor [54].

Außerdem muss beachtet werden, dass bei einem 3-Niveau-Energie-System, wie dem des NV^- -Zentrums, die Korrelationsfunktion 2. Ordnung bei schwachen Anregungsleistungen nahezu 0 ist, während bei stärkeren Anregungen der Shelving State stärker zum Tragen kommt und die Korrelationsfunktion 2. Ordnung über einen Wert von 1 hinaus gehen kann und für größere Verzögerungen $\tau > 0$ zu 1 zerfällt [9], siehe Kapitel 2. 2. 2.

2. 2. 2. Korrelationsfunktion 2. Ordnung für das 3-Niveau-System

Es hat sich herausgestellt, dass die Beschreibung des NV^- -Zentrums mit Hilfe eines 2 Niveauenergie-Systems unzureichend ist, insbesondere bei stärkeren Anregungsleistungen [29] und bei negativ-geladenen Stickstofffehlstellenzentren [13], [46]. Daher soll an dieser Stelle

die Korrelationsfunktion in Abhängigkeit der Verzögerungen τ für ein 3-Niveauenergie-System vorgestellt werden. Eine solches System ist in Abbildung 2-11 schematisch dargestellt.

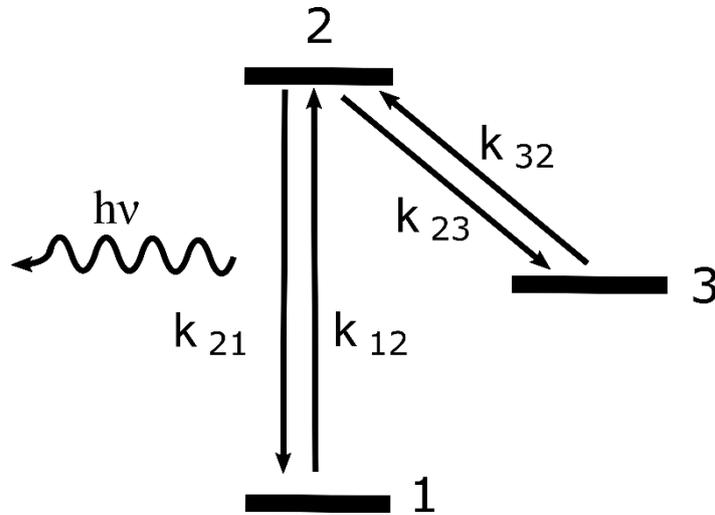


Abbildung 2-11: 3-Niveau-System als Berechnungsgrundlage für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung nach [29].

Die Herleitung der analytischen Ausdrucks für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung erfolgt nach Referenz [29]. Die Grundlage bildet die Populationsdynamik welche anhand des 3-Niveau-Energie-Schemas aufgestellt werden kann:

$$\begin{pmatrix} \dot{\varrho}_1 \\ \dot{\varrho}_2 \\ \dot{\varrho}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_{12} & k_{21} & 0 \\ k_{12} & -k_{21} - k_{23} & k_{32} \\ 0 & k_{23} & -k_{32} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \varrho_1 \\ \varrho_2 \\ \varrho_3 \end{pmatrix} \quad (14)$$

Die Populationsdynamik beinhaltet alle möglichen Übergänge, vernachlässigt aber den Übergang vom metastabilen Zustand in den Grundzustand. Diese Vernachlässigung kann vorgenommen werden, da die Übergangsrate aus diesem Zustand drei Größenordnungen kleiner ist als die anderen Übergangsraten [29]. Die Anfangsbedingungen für diesen Prozess sind ein gefüllter Grundzustand mit $\varrho_1 = 1$ und leere Zustände auf den Niveaus 2 und 3, ausgedrückt durch $\varrho_2 = \varrho_3 = 0$.

Die Emissionswahrscheinlichkeit eines Photons ist proportional zu ϱ_2 , daher kann die Korrelationsfunktion 2. Ordnung bestimmt werden aus $\varrho_2(t \rightarrow \infty)$ [29]:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + c_2 e^{-\tau/\tau_2} + c_3 e^{-\tau/\tau_3}. \quad (15)$$

Die Konstanten und Zerfallszeiten sind dabei wie folgt definiert:

$$\begin{aligned}
\tau_{2,3} &= \frac{2}{A \pm \sqrt{A^2 - 4B}}, \\
c_2 &= \frac{(1 - \tau_2 k_{32})}{k_{32}(\tau_2 - \tau_3)}, \\
c_3 &= -1 - c_2, \\
A &= k_{12} + k_{21} + k_{32} + k_{23}, \\
B &= k_{12}k_{23} + k_{12}k_{32} + k_{21}k_{32}.
\end{aligned} \tag{16}$$

Die Amplitude c_2 und die Anstiegszeit bzw. Lebensdauer τ_2 charakterisieren die Kinetik zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand. Während c_3 und τ_3 der Population und der Lebensdauer des metastabilen Zustands entsprechen [55], [56].

Es hat sich gezeigt, dass mit höheren Anregungsleistungen der metastabile Zustand stärker angeregt wird und es zum Bunching für $\tau \neq 0$ kommt [53].

2.3. Konfokale Mikroskopie

Erste Versuche zur Umsetzung zur konfokalen Mikroskopie wurden 1951 von J. Z. Young und F. Roberts und 1957 durch M. Minsky durchgeführt [57]. 1957 ließ sich Marvin Minsky das konfokale Mikroskop patentieren [58]. Der Name des Mikroskops ergibt sich aus der Übereinstimmung von Anregungs- und Detektionsfokus [26]. Mit der Erfindung des Lasers konnten viele Probleme behoben werden und 1969 entwickelten P. Davidovits und M. D. Egger ein Laser-basiertes konfokales Laser-Scanning-Mikroskop [57]. Entscheidend bei der konfokalen Mikroskopie ist die selektive Anregung und Detektion eines Objekts, wie beispielsweise eines Einzelphotonenemitters [59].

Im konventionellen Mikroskop wird die Abbildungsqualität maßgeblich durch die Optik bestimmt, während beim konfokalen Mikroskop sowohl die Optik als auch die Blende (das sogenannte „*Pinhole*“) eine wichtige Rolle spielen [60]. Die Objektivlinse bestimmt die Vergrößerung, das Sichtfeld sowie die Auflösung. Die Qualität der Objektivlinse hat Einfluss auf die Transmission, den Bildkontrast und die Aberration des Bildes [61].

Die Basiselemente des konfokalen Mikroskops sind Objektivlinse, Blende und Lichtquelle bzw. Anregung [60], [61]. Ein essentieller Bestandteil davon ist die konfokale Blende, dessen

Durchmesser festlegt, wieviel Licht außerhalb der Fokusebene ausgeblendet wird [60]. Damit unterdrückt die Lochblende Streulicht, welches lateral und axial außerhalb des Fokus liegt [26]. Die Bilderzeugung erfolgt punktwise [61]. Dabei wird eine Probe mit einem Laserstrahl schrittweise (in der x-y-Ebene) abgerastert. Die Fluoreszenz, emittiert von der Probe, wird auf die Koordinaten des Abtastung bezogen detektiert und digital verarbeitet [60].

Die Vorteile der konfokalen Mikroskopie sind vielfältig. Zum einen ist diese Form der Mikroskopie inhärent tiefendiskriminierend. So kann beispielsweise aus einer dicken Schicht von 100 μm ein optischer Schnitt von 500 nm Stärke abgebildet werden [60]. Zudem liegt ein weiterer großer Vorteil in der Streulichtunterdrückung [60] und im hohen Kontrast [60], [61]. Es treten außerdem keine Speckles auf [61].

Es wird in zwei verschiedene Formen der konfokalen Mikroskopie unterschieden: das konfokale Transmissionsmikroskop und das konfokale Reflexionsmikroskop [26].

Die grundsätzliche Funktionsweise ist in Abbildung 2-12 für ein konfokales Transmissionsmikroskop dargestellt.

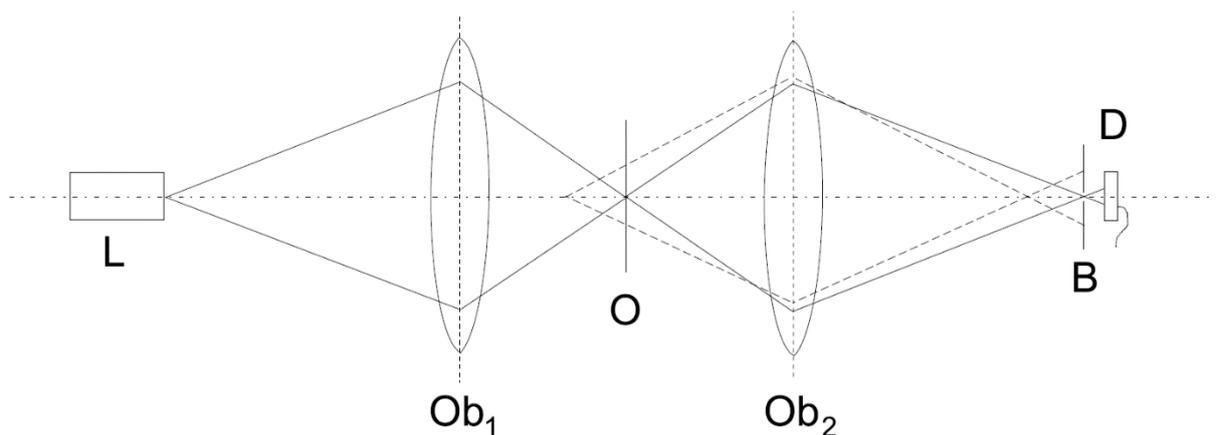


Abbildung 2-12: Aufbau konfokales Transmissionsmikroskop [26].

Anhand der Darstellung in Abbildung 2-12 zeigt sich, dass die Brennpunkte der beiden Objektivlinsen (Ob_1 und Ob_2) auf einen Punkt zusammenfallen und an diesem Punkt befindet sich das zu untersuchende Objekt (O). Die Blende (B) lässt nur die Emission durch, die vom Objekt ausgeht. Licht, welches aus anderen Bereichen kommt, wird an der Blende geblockt (gestrichelte Linie). Somit kann nur Licht vom Objekt selbst die Blende passieren und vom Detektor (D) detektiert werden.

Im zweiten Fall des konfokalen Mikroskops erfolgt die Anregung der Probe und die Einsammlung der Emission mit demselben Mikroskopobjektiv. Um einen solchen Aufbau zu gewährleisten, wird ein dichroitischer Spiegel verwendet [59], sodass die Anregungswellenlänge an diesem reflektiert wird und die Emission durch diesen transmittiert wird. Bei der zu untersuchenden Emission kann es sich um Fluoreszenz vom Objekt handeln. Dies ist der Fall bei der Untersuchung von Einzelphotonenemittern, das konfokale Mikroskop kann dann als konfokales Fluoreszenzmikroskop verstanden werden.

Der in Abbildung 2-13 dargestellte Strahlenverlauf im konfokalen Mikroskop ist wie folgt: Laserlicht wird unter Verwendung eines dichroitischen Spiegels umgelenkt und mit Hilfe eines Mikroskopobjektivs auf das zu untersuchende Substrat fokussiert. Das Fluoreszenz-Signal von der Probe wird mit demselben Mikroskopobjektiv eingesammelt. Da nur auf einen Punkt auf der Probe fokussiert wird, kann auch nur von diesem einen Punkt Information in Form von Fluoreszenz gewonnen werden. Um einen Ausschnitt der Probe untersuchen zu können, muss daher entweder die der Anregungsstrahl positionierbar sein oder die Probe muss beweglich gelagert werden (beispielsweise unter Verwendung eines Piezo-Verschiebetischs) [9], [29], [62], [63]. Es ist aber auch möglich das Objektiv mit Hilfe eines Piezo-Verschiebetischs zu bewegen [26].

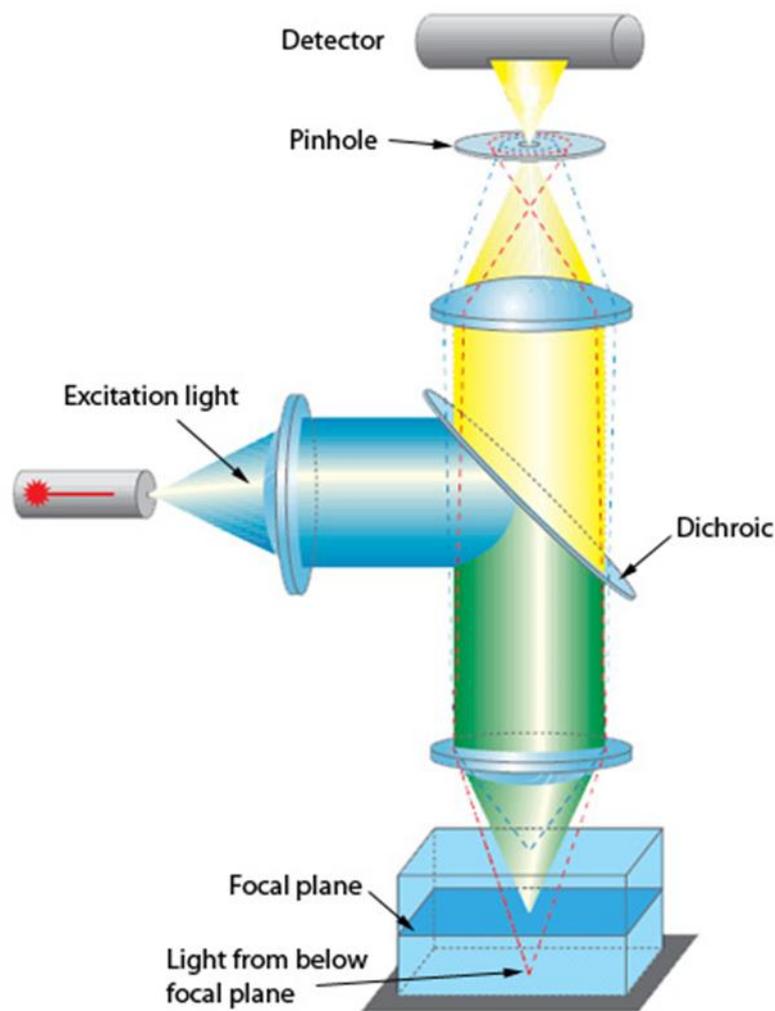


Abbildung 2-13: Darstellung des konfokalen Mikroskopaufbaus; die gestrichelte rote und blaue Linie zeigen den Strahlengang zweier nicht-fokalen Ebenen [62].

Das Fluoreszenzsignal wird durch das Mikroskopobjektiv kollimiert und passiert den dichroitischen Spiegel, da die Wellenlänge der Fluoreszenz sich von der Anregungswellenlänge unterscheidet und somit nicht durch den Spiegel reflektiert wird. Das Fluoreszenzsignal wird dann mit Hilfe einer Linse auf eine Aperturblende (konfokale Blende) fokussiert und hinter der Aperturblende befindet sich der Detektor. Die Blende ist dafür verantwortlich, dass hauptsächlich nur Licht aus der Fokusebene den Detektor erreicht. Licht aus anderen Ebenen wird durch die Blende weitestgehend blockiert (siehe rot und blau gestrichelte Linie). Somit haben konfokale Mikroskope eine gute Auflösung bezüglich der z-Achse bzw. der Höhe [60], [62]. Zudem wirkt die Blende Streulicht-unterdrückend, was wiederum den Kontrast steigert [60].

2. 4. Antennenstrukturen

Die Abstrahlung der Emission eines Quantenemitters erfolgt in erster Näherung als Dipolstrahlung in 4π -Raumwinkel [18]. Diese sehr divergente Abstrahlung wirkt sich negativ auf die Einsammeleffizienz aus [19], [64]. In Hinblick auf zukünftige Anwendungen werden daher Lösungen gesucht, die die Abstrahlcharakteristik hinsichtlich der Einsammeleffizienz optimieren.

So wird beispielsweise an optischen Antennenstrukturen gearbeitet, die die Emissionsrichtung abändern [64], was sich wiederum positiv in einer Erhöhung der Einfangeffizienz äußert [18]. Die Änderung der Emission ist dabei als eine Umverteilung der Strahlungsleistung in einen Raumwinkel zu verstehen und die Emission aus diesem Raumwinkel kann idealerweise mit einem Mikroskopobjektiv eingefangen werden [18].

Optische Antennen bestehen aus dielektrischen und metallischen Nano-Strukturen. Sie lenken die Emission von Emittlern, die sich innerhalb der Nahfeld-Distanz zur Antenne befinden [64]. Man unterscheidet strukturierte und unstrukturierte Antennenstrukturen. Unter strukturierten Antennen versteht man beispielweise Gold-Nano-Öffnungen, die umrandet sind von periodischen Materialwellen und zu den unstrukturierten Strukturen gehören ebene Gold- oder Silberfilme [64].

Entscheidend für die gesteuerte Emissionsrichtung ist die Nahfeld-Interaktion zwischen Emittler und optischer Antenne, denn sie modifiziert das Strahlungsmuster. Dabei wird die Interaktion dominiert durch die Antennencharakteristik [20].

Im Folgenden soll auf die Berechnung und die Messung der winkelabhängigen Emission in Zusammenhang mit einer dielektrischen Schicht eingegangen werden.

2. 4. 1. Berechnung der winkelabhängigen Emissionsverteilung

Die Berechnung für die Emission einer Dipolstrahlung, welche durch eine dielektrische Schicht beeinflusst wird, erfolgt nach Referenz [65]. Der Dipol wird zunächst als senkrecht auf einer dielektrischen Schicht, welche das Medium 2 darstellt, stehend betrachtet. Dabei befindet sich der Dipol vollständig in Medium 1. Medium 2 ist optisch dichter als Medium 1. Zur besseren Verständlichkeit zeigt Abbildung 2-14 die Lage des Dipols bezüglich der umgebenden Medien.

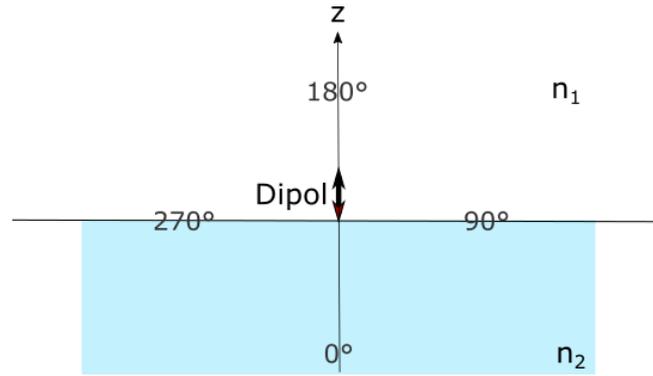


Abbildung 2-14: Schematische Darstellung des Dipols und der umgebenden Medien.

Da sich der Dipol senkrecht auf der Grenzfläche zwischen den beiden umgebenden Medien befindet, strahlt dieser die Emission rotationssymmetrisch um die z-Achse ab [65]. Daher muss die Berechnung lediglich von 0° bis 180° durchgeführt werden. Der Winkelbereich zwischen 0° und 90° ist durch Medium 2 geprägt, welches einen Brechungsindex n_2 besitzt. Da Medium 2 optisch dichter ist als Medium 1 ($n_2 > n_1$) kommt es ab einem kritischen Winkel zur Totalreflexion innerhalb von Medium 2. Der kritische Winkel α_K berechnet sich wie folgt aus den Brechungsindizes n_1 und n_2 der Medien 1 und 2 [65]:

$$\alpha_K = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\right) = \arcsin\left(\frac{1}{n}\right), \quad (17)$$

wobei

$$n = \frac{n_2}{n_1}. \quad (18)$$

Für einen Emissionswinkel zwischen 0° und dem kritischen Winkel ($0^\circ \leq \alpha_{G1} \leq \alpha_K$) kann ein Winkel α_{G2} definiert werden

$$\alpha_{G2} = \arcsin(n \sin(\alpha_{G1})). \quad (19)$$

Die magnetische Dipolkomponente P_{mG1} bestimmt sich für diesen Winkelbereich nach [65] zu:

$$P_{mG1} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^5 \sin^2(2\alpha_{G1})}{(\cos(\alpha_{G2}) + n \cos(\alpha_{G1}))^2} \quad (20)$$

und die elektrische Dipolkomponente $P_{e,G,1}$ zu:

$$P_{eG1} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^5 \sin^2(2\alpha_{G1})}{(n \cos(\alpha_{G2}) + \cos(\alpha_{G1}))^2}. \quad (21)$$

Die magnetische Dipolkomponente P_{mG2} der Emission, die sich in Medium 2 für Winkel größer dem kritischen Winkel ausbreitet ($\alpha_K < \alpha_{G1} \leq 90^\circ$), kann die wie folgt bestimmt werden:

$$P_{mG2} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^5 \sin^2(2\alpha_{G1})}{(n^2 - 1)^2} e^{(-z_1 \sqrt{(n^2 \sin^2(\alpha_{G1}) - 1})}, \quad (22)$$

dabei ist $z_1 = 4\pi z_0 / \lambda$. Allerdings wird angenommen, dass sich der Dipol direkt auf der Grenzfläche befindet und daher $z_0 = 0$. Dem entsprechend kann der Ausdruck für die magnetische Dipolkomponente vereinfacht werden zu:

$$P_{mG2} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^5 \sin^2(2\alpha_{G1})}{(n^2 - 1)^2}. \quad (23)$$

Die elektrische Dipolkomponente wird wie folgt bestimmt:

$$P_{eG2} = \frac{P_{mG2}}{((n^2 + 1)^2 \sin^2(\alpha_{G1}) - 1)} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^5 \sin^2(2\alpha_{G1})}{(n^2 - 1)^2 ((n^2 + 1)^2 \sin^2(\alpha_{G1}) - 1)}. \quad (24)$$

Die Emission in Medium 1 ist definiert durch den Winkel α_L , welcher für den Winkelbereich $90^\circ < \alpha_L \leq 180^\circ$ definiert ist. Für die Berechnung wird wie folgt vorgegangen:

$$\alpha_{L1} = \pi - \alpha_L \quad (25)$$

und

$$\alpha_{L2} = \arcsin\left(\frac{\sin(\alpha_{L1})}{n}\right). \quad (26)$$

Anhand der beiden definierten Winkel α_{L1} und α_{L2} können nun die magnetische P_{mL} und elektrische Dipolkomponente P_{eL} berechnet werden:

$$P_{\text{mL}} = \frac{3}{8\pi} \frac{\sin^2(2\alpha_{\text{L1}})}{(\cos(\alpha_{\text{L1}}) + n \cos(\alpha_{\text{L2}}))^2} \quad (27)$$

und

$$P_{\text{eL}} = \frac{3}{8\pi} \frac{n^2 \sin^2(2\alpha_{\text{L1}})}{(n \cos(\alpha_{\text{L1}}) + \cos(\alpha_{\text{L2}}))^2}. \quad (28)$$

Bei der Betrachtung der Emission eines Dipols, der sich parallel zur Grenzschicht befindet ($\theta = 0^\circ$), handelt es sich um keine rotationssymmetrische Abstrahlung, daher muss zudem unterschieden werden, ob die Dipolemission entlang der Dipolachse betrachtet werden soll oder im 90° Winkel zu der Dipolachse. Der Azimutwinkel φ beträgt für diese beiden Fälle 0° oder 90° . Für die Berechnung nach [66] werden im Folgenden nur die elektrischen Dipolkomponenten betrachtet. Zudem muss für die Berechnung der winkelabhängigen Emission wieder in die drei Regionen unterschieden werden, die durch den kritischen Winkel und die Grenzschicht voneinander getrennt werden.

Somit gilt für den Emissionsbereich von 0° bis zum kritischen Winkel ($0^\circ \leq \alpha_{\text{G1}} \leq \alpha_{\text{K}}$), dass [66]

$$P_{\text{eG1}} = \frac{3}{2\pi} \frac{n^3 \cos^2(\alpha_{\text{G2}}) (\cos(\theta) \sin(\alpha_{\text{G1}}) + \sin(\theta) \cos(\varphi) \cos(\alpha_{\text{G1}}))^2}{(n \cos(\alpha_{\text{G1}}) + \cos(\alpha_{\text{G2}}))^2} + \frac{3}{2\pi} \frac{n^3 \cos^2(\alpha_{\text{G2}}) \sin^2(\theta) \sin^2(\varphi)}{(n \cos(\alpha_{\text{G1}}) + \cos(\alpha_{\text{G2}}))^2}. \quad (29)$$

Für die Emission in Medium 2 und einen Winkelbereich größer dem kritischen Winkel ($\alpha_{\text{K}} < \alpha_{\text{G1}} \leq 90^\circ$) gilt nach [66]

$$P_{\text{eG2}} = f^{(p)}(\alpha_{\text{G2}}) (n^2 \cos^2(\theta) \sin^2(\alpha_{\text{G2}}) + \sin^2(\theta) \cos^2(\varphi) (n^2 \sin^2(\alpha_{\text{G2}}) - 1)) + f^{(s)}(\alpha_{\text{G2}}) \sin^2(\theta) \sin^2(\varphi), \quad (30)$$

wobei

$$f^{(s)}(\alpha_{\text{G2}}) = \frac{3}{2\pi} \frac{n^3}{n^2 - 1} \cos^2(\alpha_{\text{G2}}) e^{(-2z_0/\Delta z(\alpha_{\text{G2}}))}, \quad (31)$$

$$f^{(p)}(\alpha_{G2}) = \frac{f^{(s)}(\alpha_{G2})}{(n^2 + 1)\sin^2(\alpha_{G2}) - 1} \quad (32)$$

und

$$\Delta z(\alpha_{G2}) = \frac{\lambda_1}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{(n^2 \sin^2(\alpha_{G2}) - 1)}}. \quad (33)$$

Der Faktor z_0 beschreibt den Abstand des Dipols von der Grenzschicht und λ_1 die Emissionswellenlänge in Medium 1. Die Gleichungen haben nur Gültigkeit für einen Dipolabstand der kleiner ist als die Emissionswellenlänge ($z_0 < \lambda_1$) [66].

Für die Emission in Medium 1 ($90^\circ < \alpha_L \leq 180^\circ$) gilt nach [66]

$$P_{eL} = \frac{3 \cos^2(\alpha_{L1})(n \cos(\theta) \sin(\alpha_{L1}) - \sin(\theta) \cos(\varphi) \cos(\alpha_{L2}))^2}{2\pi (n \cos(\alpha_{L1}) + \cos(\alpha_{L2}))^2} + \frac{3 \cos^2(\alpha_{L1}) \sin^2(\theta) \sin^2(\varphi)}{2\pi (n \cos(\alpha_{L1}) + \cos(\alpha_{L2}))^2}. \quad (34)$$

2. 4. 2. Messung der winkelabhängigen Emissionsverteilung

Die experimentelle Betrachtung der winkelabhängigen Verteilung der Emission erfolgt über die die Untersuchung der Emission an der *Back Focal Plane* (BFP) im konfokalen Mikroskop [19], [20], [21], [67]. Dafür wird eine zusätzliche Linse (Back Focal Plane Linse oder auch Bertrand-Linse) in den Strahlengang eingebracht, um die Back Focal Plane des Mikroskopobjektivs auf eine CCD-Kamera abzubilden [20], [21], [64]. Dabei wird die Emission an der hinteren Brennebene des Mikroskopobjektivs abgebildet [21]. Als Ergebnis erhält man die Intensitätsverteilung der Abstrahlung in der BFP [20]. Schematisch ist der Strahlengang in Abbildung 2-15 dargestellt.

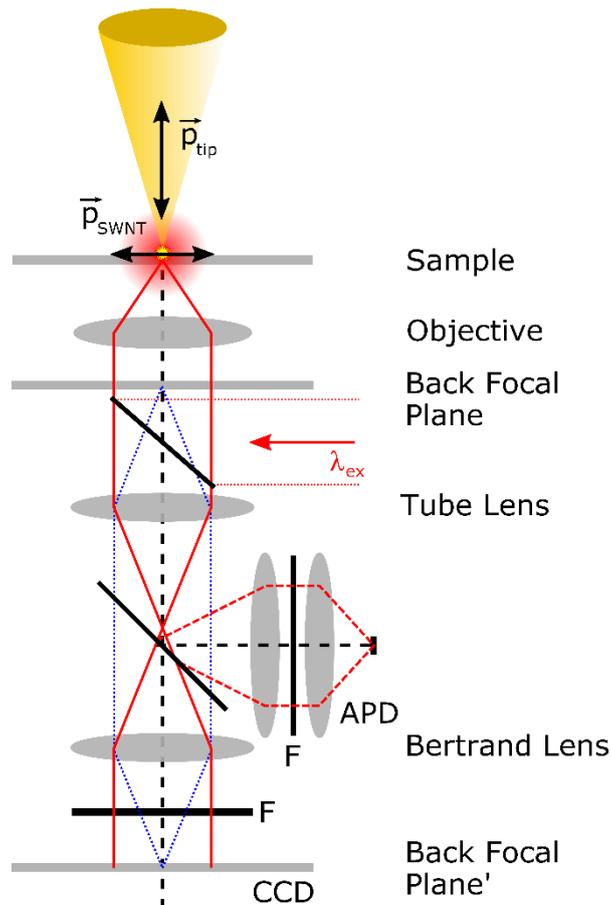


Abbildung 2-15: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Bestimmung der Back Focal Plane. Der rote Strahlenverlauf zeigt den Strahlengang im konfokalen Fluoreszenzmikroskop und der blaue Strahlenverlauf den Strahlengang zur Darstellung der Back Focal Plane auf der CCD-Kamera unter Verwendung einer Bertrand-Linse bzw. Back Focal Plane Linse. Die Probe zeigt in dieser Darstellung den Dipol eines Nanotubes (p_{SWNT}) und ein Metallspitzendipol (p_{tip}) nach [20].

Je nachdem wie der Dipol bezüglich der Grenzschicht liegt, unterscheiden sich die Bilder aus der Back Focal Plane. Im Umkehrschluss kann aus diesen Bildern auch die Dipollage ermittelt werden [21]. Die Darstellung in Abbildung 2-16 soll dies verdeutlichen.

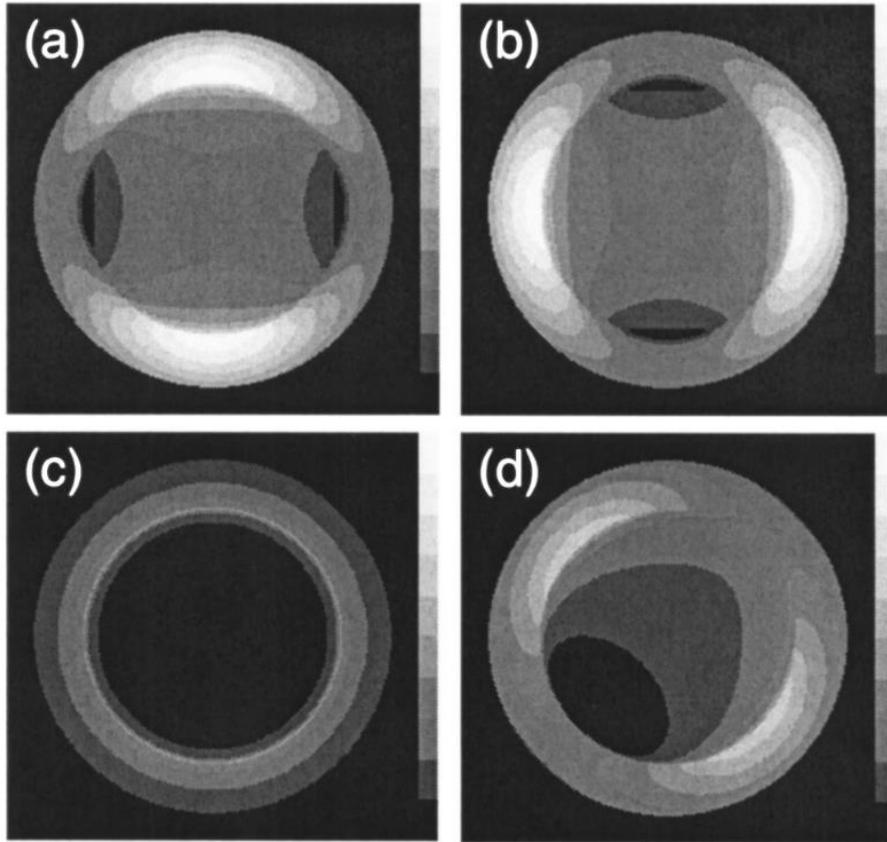


Abbildung 2-16: Berechnete Darstellung der Back Focal Plane für vier verschiedene Lagen des Dipols bezüglich der Grenzschicht zwischen Luft und Deckglas: a) der Dipol liegt parallel zur Grenzfläche in horizontaler Ausrichtung; b) der Dipol liegt parallel zur Grenzfläche mit vertikaler Ausrichtung; c) der Dipol steht senkrecht auf der Grenzfläche; der Dipol hat eine Kippung in 45° bezüglich der Grenzfläche und ist in der x-y-Ebene 45° ausgerichtet [21].

3. Experimenteller Aufbau

Im Folgenden sollen die experimentellen Gegebenheiten erläutert und erklärt werden. Dies beinhaltet sowohl die verwendeten Proben als auch den Versuchsaufbau und die verwendeten Messgeräte.

3.1. Einzelphotonenquellen

Für die Untersuchungen zur Erzeugung von Einzelphotonen sind Stickstofffehlstellen-basierte Nanodiamanten verwendet worden. Die Diamantproben sind vom Friedrich-Alexander Universität Erlangen-Nürnberg (FAU) für die Physik des Lichts in Erlangen in der Gruppe von Stephan Götzinger von Xiao-Liu Chu hergestellt worden.

Es wurden Stickstofffehlstellen-dotierte Nanodiamanten (0.15 GAF¹) der Firma Microdiamant verwendet. Die durchschnittliche Größe dieser Nanodiamanten beträgt 75 nm [68]. Am MPI wurden diese Nanodiamanten über das Spin-Coating-Verfahren auf gereinigtes Deckglas aufgetragen. Somit befinden sich die Nanodiamanten direkt auf dem Deckglas ohne zusätzliche dielektrische Schichten. Eine schematische Darstellung der Proben ist in Abbildung 3-1 dargestellt. Die Probe trägt die interne Bezeichnung BRNV07.

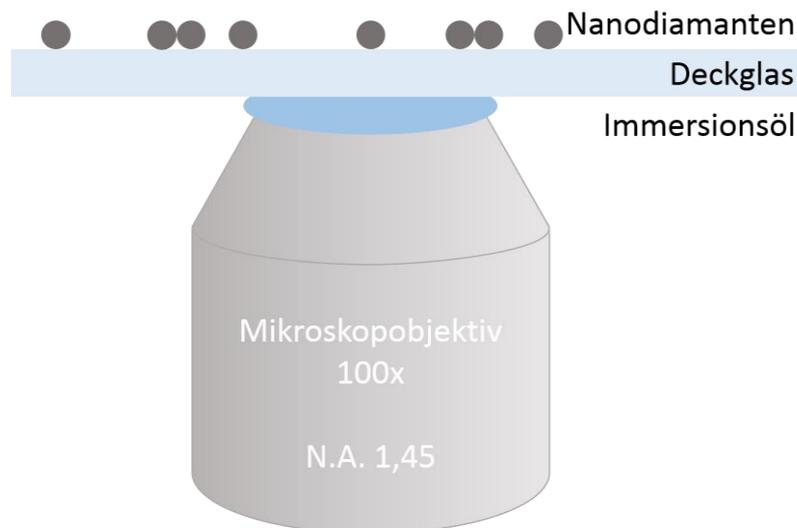


Abbildung 3-1: Schematische Darstellung der Stickstofffehlstellen-basierten Nanodiamant-Probe.

¹ GAF – Diamantkonzentrat, garantiert Agglomerat-frei

3. 2. Konfokale Messaufbau

Die Anregung der Nanodiamantproben sowie das Einsammeln der Fluoreszenz erfolgt mit Hilfe eines konfokalen Laser-Scanning-Mikroskops. Der grundlegende konfokale Messaufbau entspricht prinzipiell dem theoretischen konfokalen Aufbau, wie im Kapitel 2. 3. beschrieben. Allerdings wurde der Messaufbau mit zusätzlichen optischen Komponenten erweitert. Die zusätzlich einbrachten Bauteile sowie die Grundbauteile sind im Folgenden beschrieben. Eine schematische Darstellung des konfokalen Messaufbaus ist in Abbildung 3-2 gezeigt. Der reale Messaufbau ist auf Abbildung 3-3 und Abbildung 3-4 dargestellt.

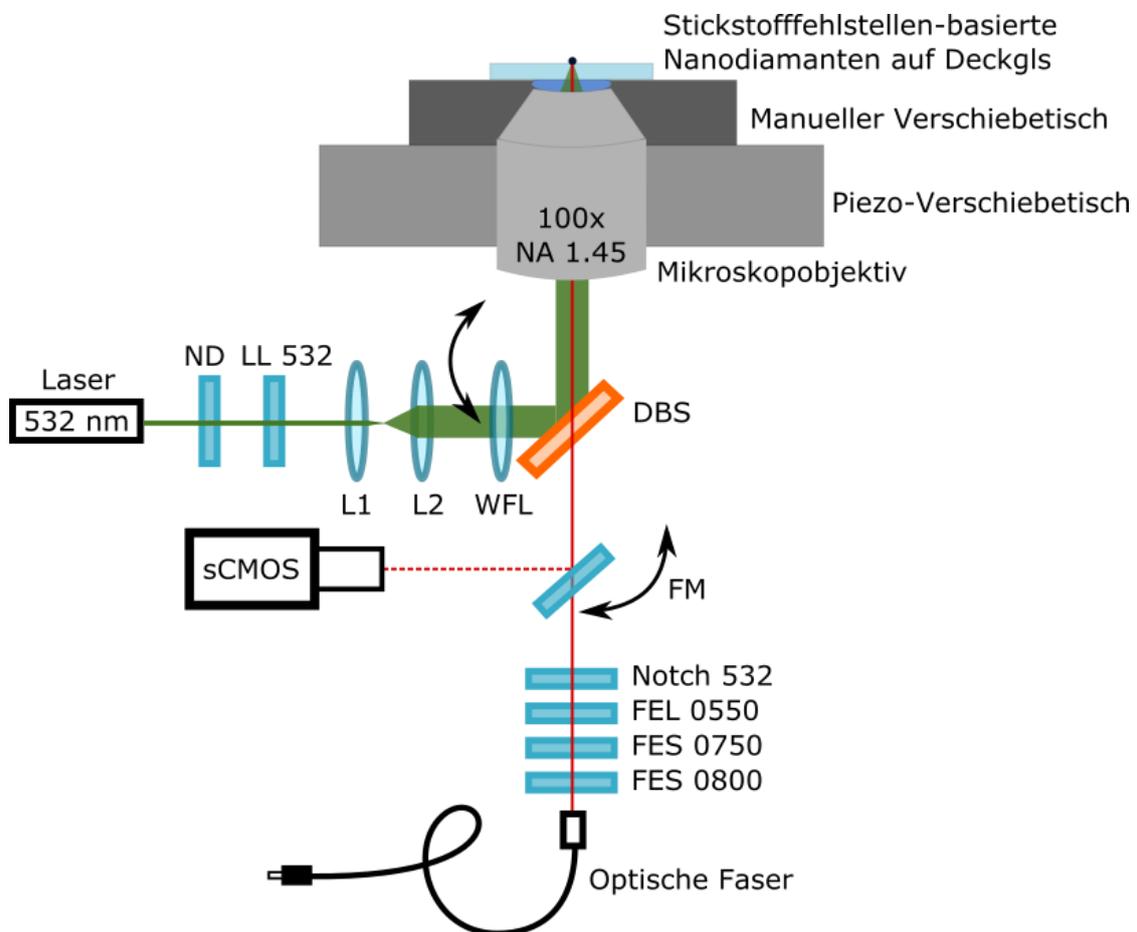


Abbildung 3-2: Schematische Darstellung des konfokalen Messaufbaus; Erklärung der Abkürzungen: ND –Neutraldichtefilter mit kontinuierlich einstellbarer Transmission, LL 532 – Laserlinienfilter für 532 nm, L1 und L2 – Linse 1 und Linse 2, WFL – bewegliche Linse für Weitfeld-Mikroskopie, DBS – dichroitischer Strahlteiler, FM – beweglicher Spiegel, Notch 532 – Notchfilter für 532 nm, FEL 0550 – Langpassfilter 550 nm, FES 0750 und FES 0800 – Kurzpassfilter 750 nm und 800 nm.

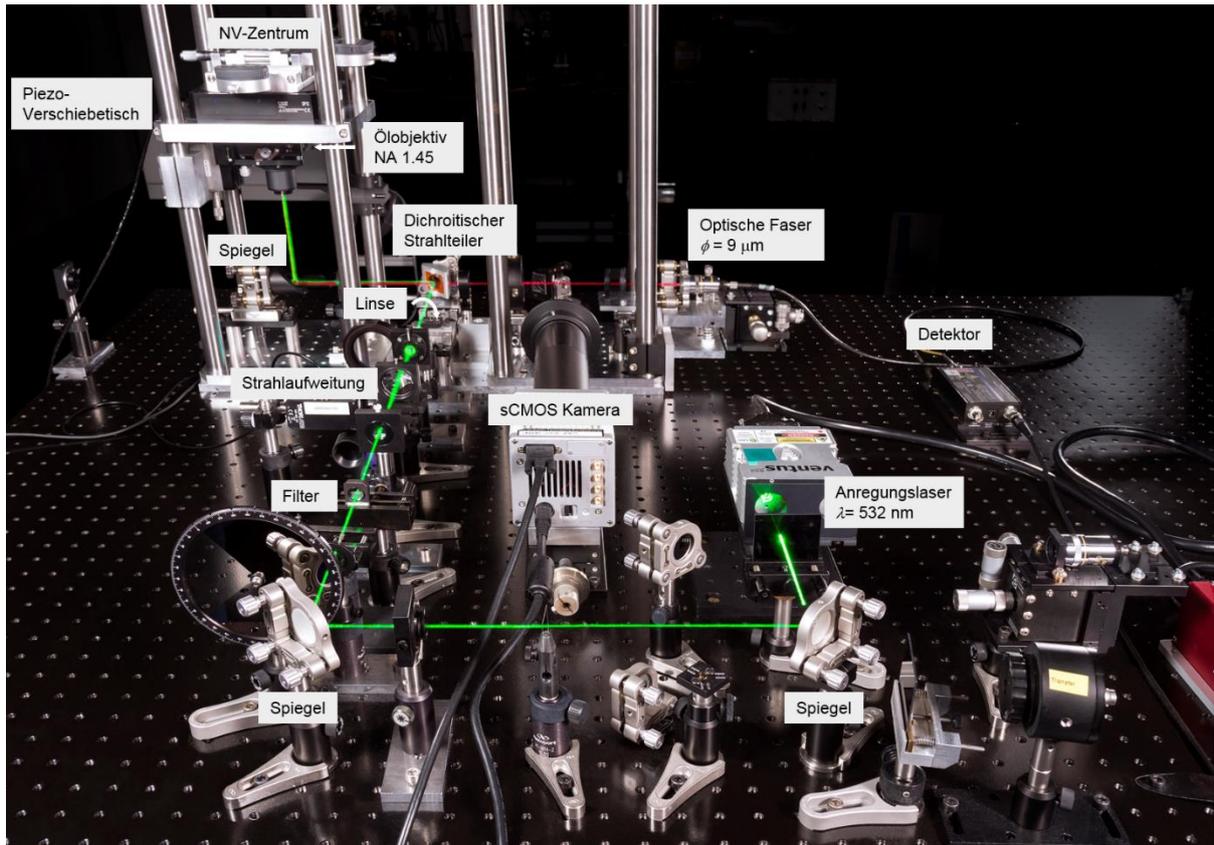


Abbildung 3-3: Fotografische Aufnahme der Einzelphotonenquelle inkl. des konfokalen Aufbaus und der NV-Probe - Rückansicht.

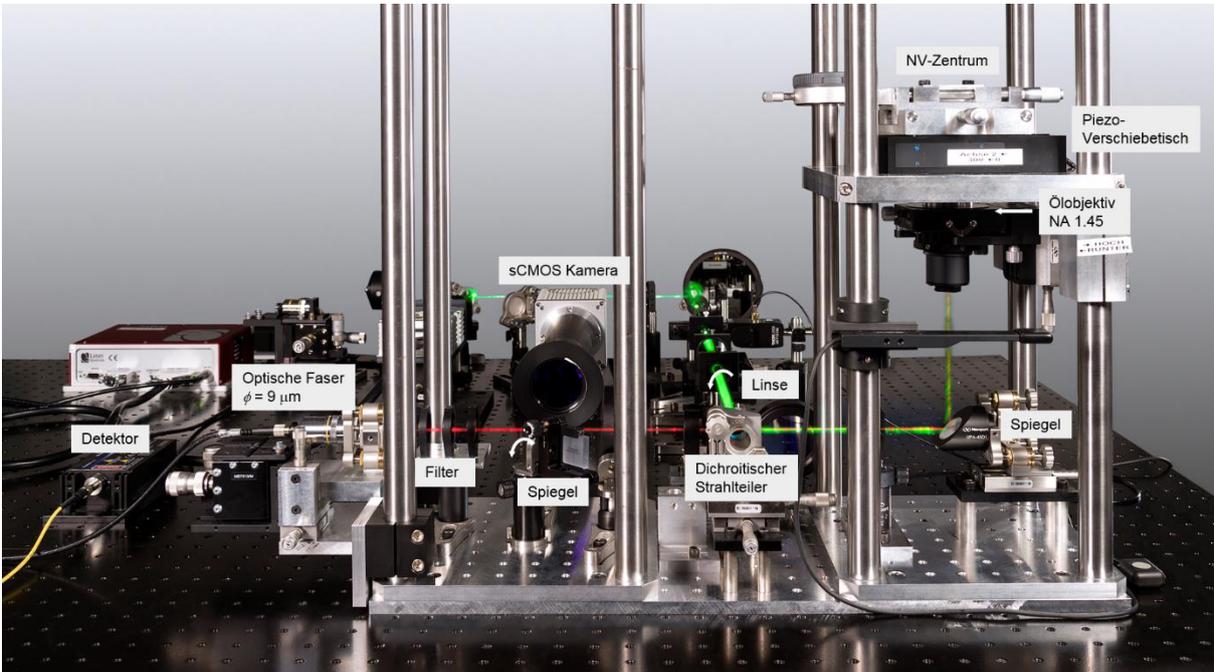


Abbildung 3-4: Fotografische Aufnahme der Einzelphotonenquelle inkl. des konfokalen Aufbaus und der NV-Probe - Frontansicht.

Bevor das Laserlicht auf die Probe trifft, wird es mit Hilfe von verschiedenen optischen Komponenten aufbereitet. Der Laserstrahl wird mit einem Neutraldichtfilter abgeschwächt. Hierfür wird ein runder, kontinuierlich verlaufender Neutraldichtfilter (NDC-100C-4M) der Firma Thorlabs verwendet. Zudem wird ein Laserlinienfilter (Semrock, 532 nm MaxLine) für 532 nm verwendet, um eventuelle Nebenlinien aus dem Laserlicht zu entfernen. Um den Laserstrahl optimal in das Mikroskopobjektiv einzukoppeln, wird der Strahl mit Hilfe von zwei plankonvexen Linsen aufgeweitet. Anschließend wird der Laser Strahl an einem dichroitischen Strahlteiler (FF560Di01, Semrock) reflektiert.

Der bisherige Verlauf des Laserstrahls findet in einer Ebene parallel zur Labortischebene statt. Da im Weiteren ein Immersionsölobjektiv mit Immersionsöl verwendet wird, wurde nun die Strahlebene vertikal zur Labortischebene angepasst. Dies ist günstig, da ein unnötiges Abtropfen des Öls und eine damit einhergehende ungleiche Verteilung des Öls zwischen Mikroskopobjektiv und Probe vermieden wird. Die Strahlumlenkung wird erreicht durch die Verwendung eines Planspiegels (Protected Aluminium, Thorlabs). Der Laserstrahl wird anschließend mit einem Immersionsöl-Mikroskopobjektiv (Nikon, CFI Plan Apochromat Lambda) auf die Probe fokussiert. Aufgrund der Fokussierung auf nur einen Punkt auf der Probe, kann es auch nur zu einer Fluoreszenzemission von diesem einen Punkt kommen, vorausgesetzt, dass sich an dieser Stelle ein Nanodiamant mit Fehlstelle befindet. Um Informationen von einem Ausschnitt der Probe zu erhalten und nicht nur von einem Punkt, ist diese auf einem mechanischen Verschiebetisch aus der hausinternen Werkstatt gelagert. Da mit diesem Tisch nur eine grobe Positionierung möglich ist und dieser nicht mit einem Computer ansteuerbar ist, ist dieser Verschiebetisch wiederum auf einem Piezo-Verschiebetisch (P563.3CD) der Firma PI (Physik Instrumente) befestigt. Dieser Verschiebetisch hat einen Verfahrweg von 300 μm in alle 3 Raumachsen und ist mit Hilfe eines Kontrollers (E-725.3CD), ebenfalls von PI, Computer-gestützt ansteuerbar und damit feinverstellbar (bis auf 10 nm genau einstellbar). Die Abbildung 3-5 zeigt die Diamantprobe auf dem Probeträger, welcher wiederum auf dem manuellen Verschiebetisch und dem Piezo-Verschiebetisch befestigt ist.

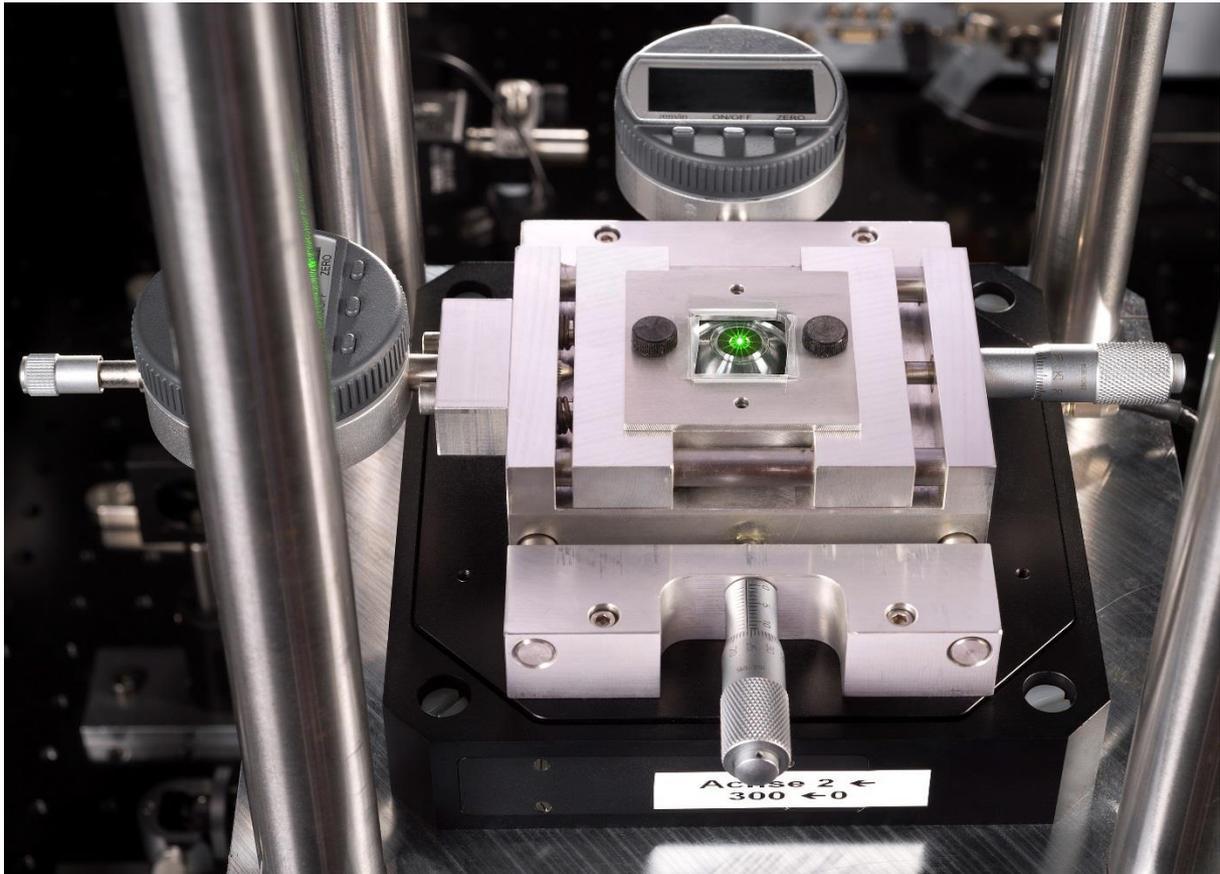


Abbildung 3-5: Fotografische Aufnahme der Diamantprobe befestigt auf den Verschiebetischen. Der Laserstrahl wird mit dem Mikroskopobjektiv auf einen Punkt der Probe fokussiert.

Werden in der Probe NV-Zentren in Nanodiamanten angeregt, so wird die Fluoreszenz mit dem gleichen Mikroskopobjektiv eingesammelt, das auch schon für die Anregung verwendet wurde. Das Fluoreszenzsignal wird ebenfalls am Spiegel, der die Arbeitsebene um 90° kippt, reflektiert und passiert anschließend den dichroitischen Spiegel. Im Weiteren werden mit Hilfe eines Notchfilters (NF 533 von Thorlabs) eventuelle Reflexionen vom Laserlicht herausgefiltert. Um Streulicht und eventuelle Hintergrundstrahlung zu minimieren und um sicherzustellen, dass lediglich die gewünschte Fluoreszenz untersucht wird, sind ein Langpassfilter (FEL 550, Thorlabs) sowie zwei Kurzpassfilter (FES 750 und FES 800 von Thorlabs) in den Strahlengang eingebaut. Somit werden Emissionen unterhalb von 550 nm und oberhalb von 750 nm blockiert. Anschließend wird die Fluoreszenz unter Verwendung eines Mikroskopobjektivs mit 10-facher Vergrößerung (Edmund Optics, DIN 10, NA 0,25) in eine $9 \mu\text{m}$ Glasfaser eingekoppelt. Die Glasfaser wird dann mit weiteren Messgeräten wie einen SPAD-Detektor zur Messung der Photonrate, ein Spektrometer zur Messung des Emissionsspektrums oder ein Hanbury-

Brown-Twiss-Interferometer zur Messung der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung verbunden.

Um vor einem Scan die Probe betrachten zu können und um den richtigen Arbeitsabstand des Immersionsöl-Mikroskops einzustellen, wird in den Strahlengang hinter dem dichroitischen Strahlteiler ein Spiegel in den Strahlengang geklappt, der das Licht von der Probe auf eine sCMOS-Kamera (Orca Flash 4.0 von Hamamatsu) umleitet. Mit dieser sehr empfindlichen Kamera, an welche ein Tubus mit einer Vergrößerungslinse ($f = 250$ mm, Edmund Optics, 88-925) angebracht ist, kann nun die Fluoreszenz der NV-Zentren detektiert werden. Allerdings können so nur Fluoreszenzinformationen von einem sehr kleinen Teil der Probe aufgezeichnet werden, nämlich dem Teil auf den das Mikroskopobjektiv fokussiert ist. Um ein größeres Informationsfeld zu betrachten, muss ein größerer Bereich beleuchtet bzw. angeregt werden, dafür wird vor dem dichroitischen Strahlteiler eine weitere Linse ($f = 500$ mm, Thorlabs, LA1380) in den Strahlengang geklappt, welche eine Weitfeld-Mikroskopie ermöglicht. Das bedeutet, dass ein deutlich größerer Bereich ausgeleuchtet werden kann als dies bei der konfokalen Mikroskopie der Fall ist. Durch die Ausleuchtung einer größeren Fläche kann mit der sCMOS die Fluoreszenz aus diesem größeren Bereich betrachtet werden. Die folgende Abbildung 3-6 zeigt eine typische Weitfeld-Aufnahme der Probe.

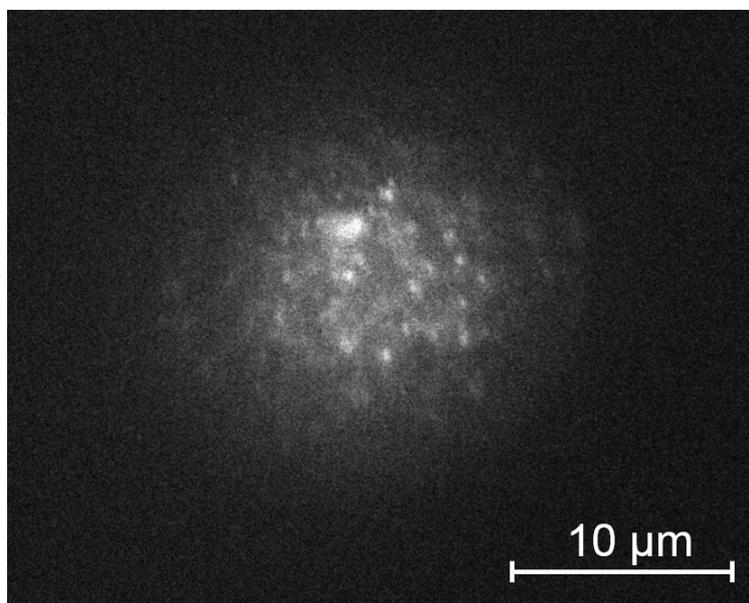


Abbildung 3-6: Aufnahme mit der sCMOS unter Verwendung der Weitfeld-Optik. Die hellen Punkte sind Emissionen aus NV-Zentren.

3. 2. 1. Objektiv

Das Herzstück des Messaufbaus stellt das Mikroskopobjektiv dar, mit welchem die Diamantprobe sowohl angeregt wird, welches aber auch für das Einfangen der Fluoreszenz verwendet wird. Um die Einfangeffizienz so hoch wie möglich zu gestalten, ist es zum einen nötig, ein Mikroskopobjektiv zu wählen, welches einen großen Öffnungswinkel α besitzt. Der Öffnungswinkel multipliziert mit dem Brechungsindex n des Mediums, welches sich zwischen Mikroskopobjektiv und Deckglas befindet, ergibt die numerische Apertur NA des Mikroskopobjektivs [61]:

$$NA = n * \sin\alpha . \quad (35)$$

In diesem Fall ist ein Öl-Immersions-Mikroskopobjektiv der Firma Nikon (CFI Plan Apochromat Lambda) verwendet worden. Es besitzt eine 100-fache Vergrößerung und die numerische Apertur beträgt 1,45. Es wird bei einem Arbeitsabstand von 0,13 mm betrieben. Das verwendete Immersionsöl (518F) ist von der Firma Zeiss. Der Brechungsindex beträgt bei 23 °C $n = 1,518$. Somit ergibt sich nach Gleichung (35) für das Mikroskopobjektiv ein Öffnungswinkel von 72,8°. Um den Gesamtöffnungswinkel zu erhalten muss der Wert verdoppelt werden, da der berechnete Öffnungswinkel rotationssymmetrisch zur optischen Achse ist. Der Gesamtöffnungswinkel dieses Mikroskopobjektivs beträgt somit 145,6°.

Zu anderen ist die Transmission des Mikroskopobjektivs entscheidend, siehe Tabelle 1.

Tabelle 1: Transmission des Mikroskopobjektivs CFI Plan Apochromat Lambda 100x [69].

Wellenlänge (nm)	400	420	450	500	550	600	650	700	750	800	850	900	950	1000	1050
Transmission (%)	56	70	77	87	90	89	87	84	80	76	75	74	74	72	70

3. 2. 2. Laser

Bei dem verwendeten Anregungslaser handelt es sich um einen 250 mW Dauerstrichlaser mit einer Wellenlänge von 532 nm (Ventus 532, Laser Quantum). Das räumliche Strahlprofil ist TEM00 und das Polarisationsverhältnis ist $> 100:1$ [70]. Der Laser wird in der Regel bei einer

Leistung von 26 mW betrieben, was einer Laserleistung vor dem Mikroskopobjektiv von 10 mW entspricht.

3. 2. 3. Detektoren

Einzelphotonendetektoren lassen sich in 3 Kategorien von Geräten einteilen: Photonenvervielfacher-Röhren, supraleitende Bauelemente und Halbleiter-basierte „*Single-Photon Avalanche Diodes*“ (Einzelphotonen-Lawinen-Dioden, kurz SPADs) [71].

Unter Photonenvervielfacher-Röhren (aus dem Englischen: „*Photomultiplier Tubes*“) versteht man Hochvakuumröhren, in denen hohe Spannungen zwischen Kathode und Anode anliegen. Durch den photoelektrischen Effekt wird an der Photokathode ein Primärelektron erzeugt. Durch einen Multiplikationsmechanismus werden Sekundärelektronen erzeugt, sodass es zu einer großen Verstärkung kommt. Problematisch bei diesen Röhren sind die hohe Dunkelzählrate und die geringe Detektionseffizienz [71].

Zu den supraleitenden Geräten zählen supraleitende Nanodraht-Einzelphotonendetektoren (aus dem Englischen: „*Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors*“; kurz SNSPDs), „*Transition Edge Sensors*“ und „*Superconducting Tunnel Junctions*“. Die Funktionsweise des SNSPDs beruht auf der Absorption eines einzelnen Photons in einem supraleitenden Nanodraht, die zur Bildung eines Hotspots führt. Je nach Ausweitung des Hotspots steigt die supraleitende Stromdichte. Übersteigt die Stromdichte einen kritischen Wert, so ändert sich der supraleitende Zustand in einen normalen Widerstands-Zustand und der Übergang generiert ein Spannungssignal, welches die Einzelphotonendetektion erkennen lassen. Die Detektionseffizienz wurde in den letzten Jahren deutlich verbessert, allerdings limitiert die kryogene Arbeitstemperatur die praktischen Anwendungen [71].

Die dritte Kategorie von Einzelphotonendetektoren umfasst die SPADs. Diese Detektoren arbeiten im Geiger-Modus. Die Detektion eines einzelnen Photons kann zu einem selbst-tragenden Lawineneffekt führen, was wiederum aus dem Betrieb oberhalb der Durchbruchsspannung

resultiert [71]. Aufgrund der guten Detektionseffizienz und dem Arbeiten bei Raumtemperatur sind diese Detektoren in der vorliegenden Arbeit verwendet worden.

Das Ausgangssignal eines SPADs unterscheidet sich von dem eines analogen Detektors. Während der analoge Detektor eine Ausgangsspannung erzeugt, die proportional (unter der Annahme eines linearen Verhaltens) zur Anzahl der einkommenden Photonen ist, sendet der SPAD einen logischen Puls. Dieser Puls indiziert die Detektion von mindestens einem Photon. Der SPAD kann nur einen Puls pro Messintervall aussenden, unabhängig von der Anzahl der detektierten Photonen. Durch Zählen der Ausgangspulse pro Zeiteinheit wird der einkommende Photonenfluss bestimmt [2].

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen ist neben dem SPAD auch ein analoger Detektor verwendet worden. Beide Detektoren werden die im Folgenden genauer beschrieben.

3. 2. 3. 1. Single-Photon Avalanche Diodes (SPAD)

Für das Kartographieren der Diamantprobe sowie für die Messung mit dem HBTI wird ein (bzw. zwei für die HBTI-Messung) Single Photon Avalanche Diode (SPAD) der Firma Perkin Elmer (SPCM-AQRH-13-FC-18714) verwendet. Der SPAD operiert im Geiger-Modus. Durch die Detektion eines Photons wird eine Lawinen-Verstärkung ausgelöst, die einen makroskopischen Einsturz in dem Diodenübergang auslöst. Der Lawinen-Effekt muss gestoppt werden und das Gerät mit Hilfe eines „*Quenching*“-Kreislaufrs zurückgesetzt werden, damit ein weiteres Photon detektiert werden kann [72].

Der verwendete Detektor hat bei 650 nm seine höchste Detektionseffizienz von ca. 65 % und eine Dunkelzählrate von ca. 250 counts/s (Detektionen pro Sekunde). Die Totzeit beträgt ca. 22 ns [73]. Das Detektorsignal wird in einen Zähler (Modell 53220A der Firma Agilent) eingespeist und die vom SPAD ausgesendeten Pulse pro Zeiteinheit werden gezählt.

3. 2. 3. 2. Analoger Detektor

Für die absolute Charakterisierung der Einzelphotonenquelle wurde für die Bestimmung des Photonenflusses ein weiterer Detektor verwendet. Der verwendete analoge Detektor ist vom

tschechischen Metrologie Institut, dem CMI (Ceský Metrologický Institut), entwickelt worden (siehe Abbildung 3-7).

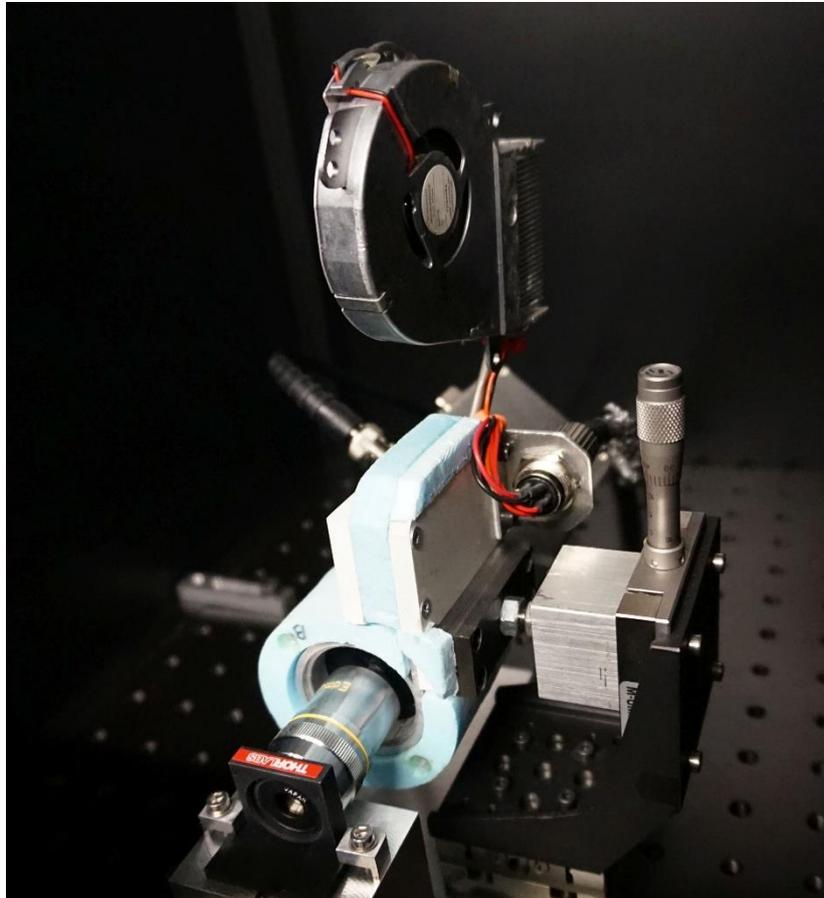


Abbildung 3-7: Fotografie des vom CMI entwickelten Detektors (LOFD) inklusive Einkoppelobjektiv und Temperaturstabilisierung.

Der „*Low Optical Flux Detector*“ (LOFD) ist in der Lage Photoströme kleiner als 100 fW zu detektieren. Herzstück des Detektors bildet eine kleinflächige Silicium-Photodiode (S 1227 33BQ) in Verbindung mit einem „*Switched Integrated Amplifier*“ (SIA). Abbildung 3-8 zeigt eine vereinfachte Schaltung des Detektors und des Verstärkers [74].

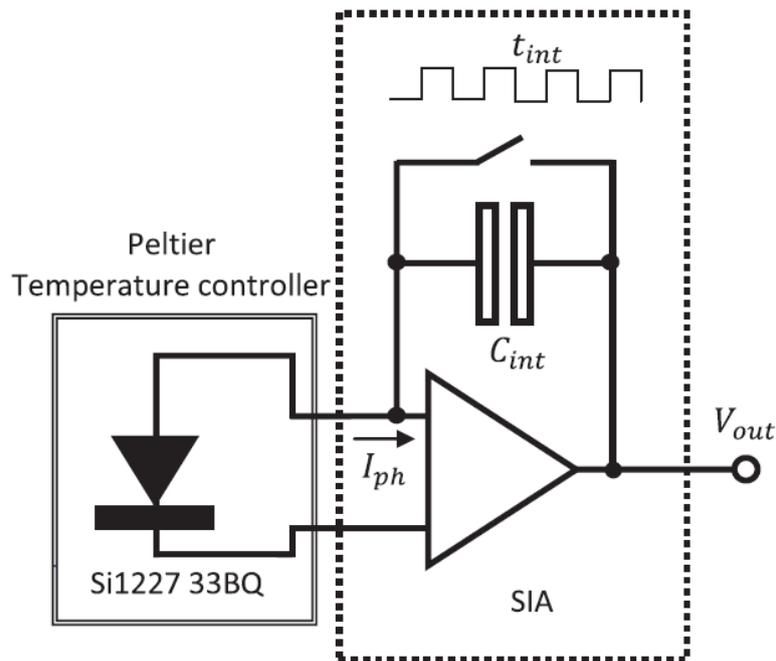


Abbildung 3-8: Schematische Darstellung des LOFD (Low Optical Flux Detector) und des SIA (Switched-Integrator Amplifier) [74].

Bei dem Integrationskondensator handelt es sich um einen Mica dielectric 1 pF, der in 1 s Integrationszeit eine Strom-zu-Spannung-Umwandlung von 10^{12} vollzieht [74]. Der Kondensator wird über 1 s durch den Strom, der durch die ankommenden Photonen erzeugt wird, aufgeladen. Nach der Sekunde wird der Integrationskondensator durch schließen des Schalters entladen und das Messverfahren kann neu gestartet werden. Die Ausgangsspannung am Ende einer Integrationszeit ist proportional dem Photonenstrom.

Der Detektor wird bei Raumtemperatur betrieben. Um den Dunkelstrom stabil und klein zu halten, wird das Gehäuse der Photodiode mit einer Peltierkühlung konstant bei 12 °C gehalten, die Stabilität beträgt ca. 0,05 °C/h [74].

Der Empfindlichkeit der Silicium-Photodiode des Detektors ist zurückgeführt auf das Kryoradiometer. Die spektrale Empfindlichkeit der Silicium-Diode wurde bei 770 nm und einer optischen Leistung von 100 μ W bestimmt und beträgt:

$$s_{Si} = 0,356324 \frac{A}{W} \pm 131 \cdot 10^{-6} \frac{A}{W} [74]. \quad (36)$$

Die wellenlängenabhängige spektrale Empfindlichkeit ist in Abbildung 3-9 dargestellt [74].

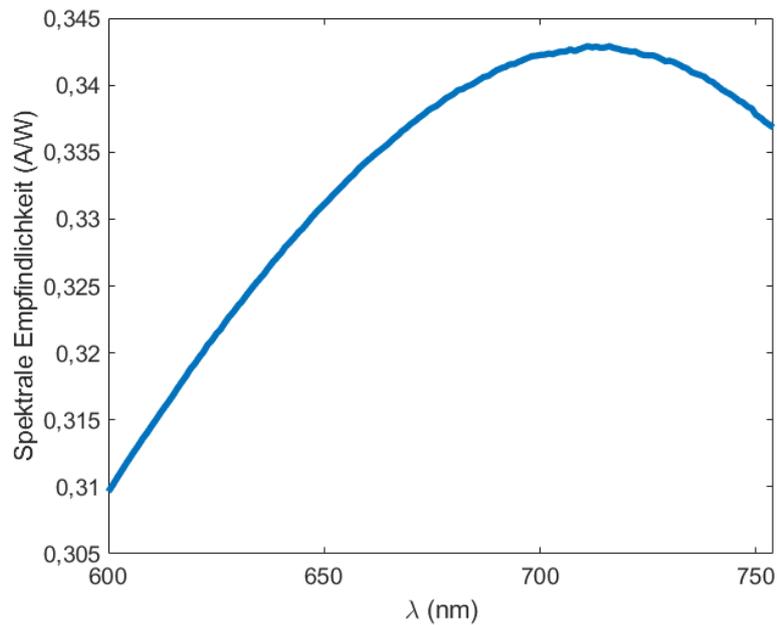


Abbildung 3-9: Spektrale Empfindlichkeit für die Siliciumdiode im LOFD des CMI [74].

Um das Fluoreszenzsignal in den Detektor einzukoppeln, wurde das Signal mit Hilfe eines weiteren Mikroskopobjektivs (Edmund Optics, DIN 10, NA 0,25) in ein Freistrahlsignal umgewandelt, welches dann wiederum unter Verwendung eines weiteren Mikroskopobjektivs (Edmund Optics, DIN 10, NA 0,25) auf die Detektionsfläche des LOFD fokussiert wurde. Der Aufbau ist schematisch in Abbildung 3-10 dargestellt.

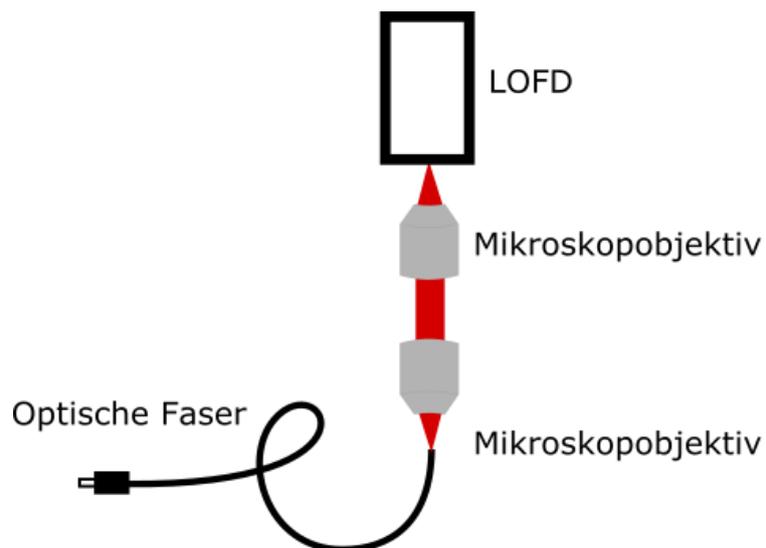


Abbildung 3-10: Darstellung der Einkopplung des Fluoreszenzsignals in den LOFD.

3. 2. 4. Spektrometer

Zur Ermittlung des Spektrums des NV-Zentrums wird ein Gitterspektrometer (iHR 320) der Firma Horiba Jobin Yvon verwendet. Es sind drei verschiedene Gitter auf einem drehbaren Gitterstuhl verbaut. Eine Darstellung des Spektrometernaufbaus ist in Abbildung 3-11 gezeigt. An die Eingangsöffnung wird die Glasfaser angeschlossen. Das Spektrum wird mit einer Stickstoff-gekühlten CCD (Typ CCD30-11; Model CCD-1024x256-bidd-3ls) aufgenommen und mit der mitgelieferten Software auf dem Computer dargestellt und gespeichert. Standardmäßig wird das Spektrometer bei NV-Zentren mit dem Reflexionsgitter 3 betrieben, welches 150 Striche pro Millimeter besitzt (Horiba, Typ 51049). Das relativ grobe Gitter ist gewählt worden, um die gesamte spektrale Emissionsbreite der NV-Zentren darstellen zu können. Dies wäre mit den anderen vorhandenen Gittern nicht möglich gewesen. Allerdings verschlechtert sich dadurch das Auflösungsvermögen des Spektrometers. Für die Messungen wurde der Eingangsspalt auf 1 mm und die Integrationszeit auf 10 s eingestellt.

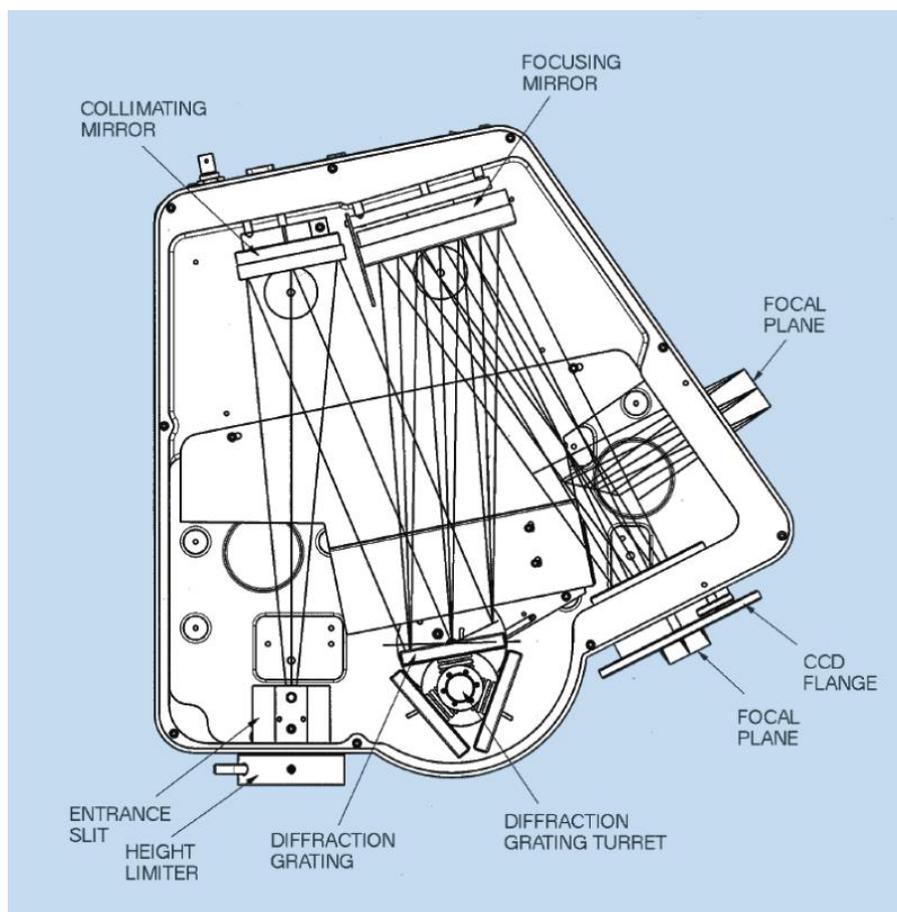


Abbildung 3-11: Aufbau des Spektrometers, iHR 320 von Horiba Jobin Yvon [75].

3. 2. 5. Hanbury-Brown & Twiss Interferometer (HBTI)

Zur Messung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung wird ein Hanbury-Brown und Twiss Interferometer verwendet [53]. In der Grundidee besteht das Interferometer aus 2 Detektoren, einem Strahlteiler (50/50) und einem Korrelator zwischen den beiden Detektoren (siehe Abbildung 3-12). Trifft nun ein einzelnes Photon auf den Strahlteiler, wird es entweder transmittiert oder reflektiert werden. Damit kann es nur von einem der beiden Detektoren detektiert werden. Im nächsten Schritt werden mehrere einzelne und aufeinander folgende Photonen zufällig von dem Strahlteiler reflektiert oder transmittiert und anschließend von den jeweiligen Detektoren detektiert. Der Korrelator zwischen den beiden Detektoren misst die Zeitdifferenz zwischen zwei Detektionen, wobei das Signal eines Detektors als Start und das des zweiten Detektors als Stopp definiert wird. Bei einer idealen Einzelphotonenquelle sollten Start- und Stoppsignal nicht gleichzeitig auftreten. Das bedeutet, dass die Aufzeichnungen des Korrelators zur Zeitdifferenz von 0 s 0 sein sollten und mit wachsender Zeitdifferenz zwischen Start- und Stoppsignal sollten sich die ermittelten Werte an 1 annähern.

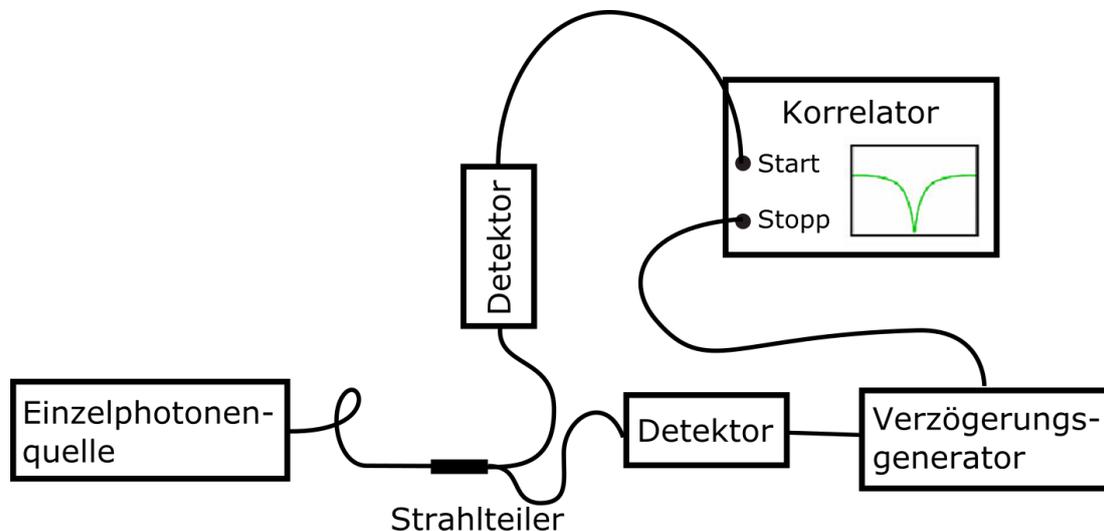


Abbildung 3-12: Schematische Darstellung des Hanbury-Brown-Twiss-Interferometers.

Für den experimentellen Aufbau wird zu dem bereits vorhandenen SPAD noch ein weiterer baugleicher SPAD verwendet. Die Glasfaser aus dem konfokalen Aufbau wird an einen Strahlteiler (New Port F-CPL-1X2-OPT) gekoppelt. Ein Detektor wird direkt an den Korrelator von (Pico Harp 300, Fa. Pico Quant) angeschlossen und dient als Startdetektor. Das Signal des

zweiten Detektors (Stopp) erst zu einem Verzögerungsgenerator (Delay Generator Model DG645 von Stanford Research Systems) weitergeleitet, welcher das Signal zeitlich um 250 ps verzögert. Anschließend wird das Signal an den Korrelator weitergeleitet. Die mitgelieferte Software verarbeitet die Daten, indem die Zeitdifferenzen zwischen Start und Stopp gemessen werden und in einem Histogramm aufgetragen werden. Aus diesen Daten kann die Korrelationsfunktion 2. Ordnung bestimmt werden.

3. 2. 6. Programmsoftware

Sowohl zur Aufzeichnung als auch zur Auswertung der Messergebnisse wurden verschiedene selbstgeschriebene Programme genutzt. Zudem wurden Programme verwendet, die bereits in der Arbeitsgruppe vorhanden waren und diese wurden an die Erfordernisse angepasst.

Zur Aufnahme der Messergebnisse wurden Programme mit Agilent VEE Pro geschrieben und erweitert. Dies beinhaltet Programme, die den Piezo-Verschiebetisch gezielt ansteuern und dabei die Einzelphotonenfluoreszenz ortsspezifisch speichern.

Die Auswertung der Messergebnisse wird mit verschiedenen eigens dafür geschriebenen MATLAB-Skripten durchgeführt. Dies beinhaltet u. a. Programme zur Bestimmung der Autokorrelationsfunktion und der Messunsicherheit.

4. Experimentelle Ergebnisse

Das Ziel der Arbeit besteht in der absoluten Charakterisierung einer Stickstofffehlstellen-basierten Einzelphotonenquelle hinsichtlich der spektralen Verteilung, des spektralen Photonенflusses und des spektralen Strahlungsflusses. Zudem soll die räumliche Abstrahlcharakteristik eines solchen Emitters untersucht werden. Um diese Ziele zu erreichen, sind mehrere Schritte von Nöten, die im Folgenden dargelegt werden.

4.1. Kalibrierung des Spektrometers

In Vorbereitung auf die absolute Messung des spektralen Photonенflusses einer Stickstoff-basierten Einzelphotonenquelle musste das Spektrometer bzgl. der Wellenlänge kalibriert werden. Hierfür wurden die mit dem Spektrometer gemessenen Spektrallinien einer Argonlampe und einer Quecksilberdampfampe (Hg(Ne)) mit Literaturwerten [76] verglichen. Aus den Abweichungen sind Korrekturfaktoren ermittelt worden, anhand derer ein Modell zur Wellenlängenkorrektur erstellt wurde.

$$\lambda_K = 1,029 \cdot 10^{-8} \cdot \lambda^2 - 1,232 \cdot 10^{-5} \cdot \lambda + 1,003. \quad (37)$$

Für die Kalibrierung der Bestrahlungsstärke wurde eine Wolfram-Glühlampe verwendet, dessen spektrale Verteilung durch eine Kalibrierung auf den Schwarzkörperstrahler bekannt ist [77]. Die spektrale Bestrahlungsstärke der Wolfram-Glühlampe ist in Abbildung 4-1 dargestellt.

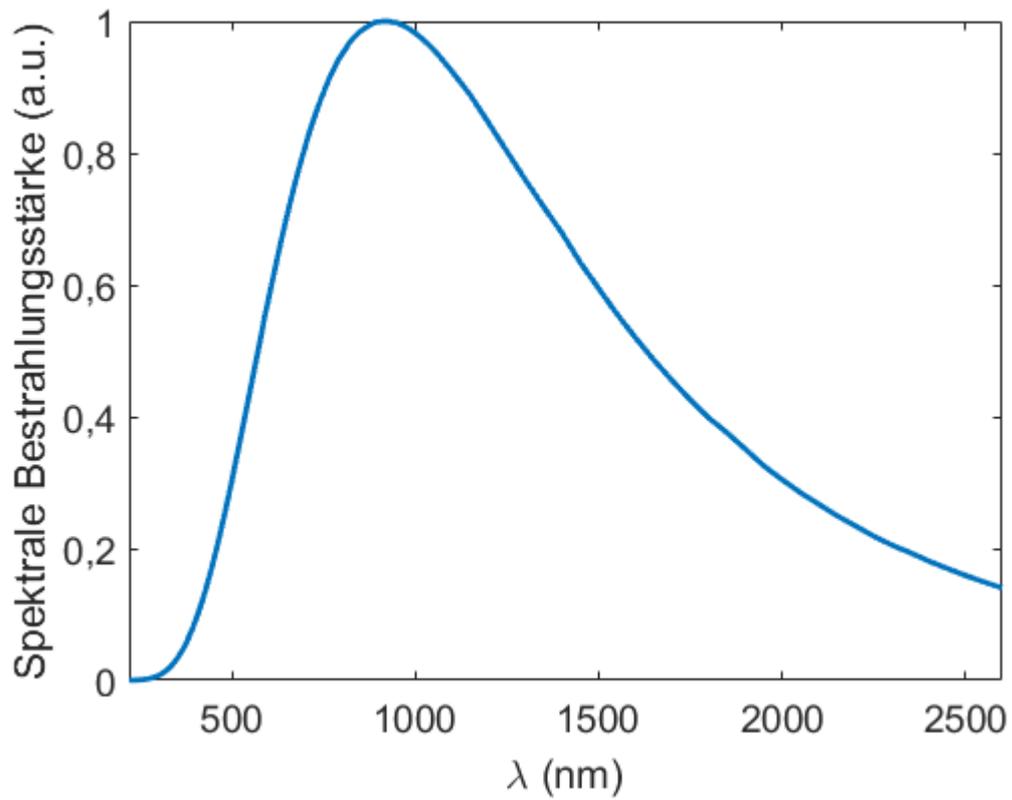


Abbildung 4-1: Spektrale Bestrahlungsstärke der Wolframlampe zurückgeführt auf den Schwarzkörperstrahler [77].

Diese Wolframlampe ist im Bereich zwischen ca. 200 nm und 1100 nm mit dem zu kalibrierenden Spektrometer gemessen worden. Die somit ermittelte spektrale Bestrahlungsstärke ist in Abbildung 4-2 gezeigt.

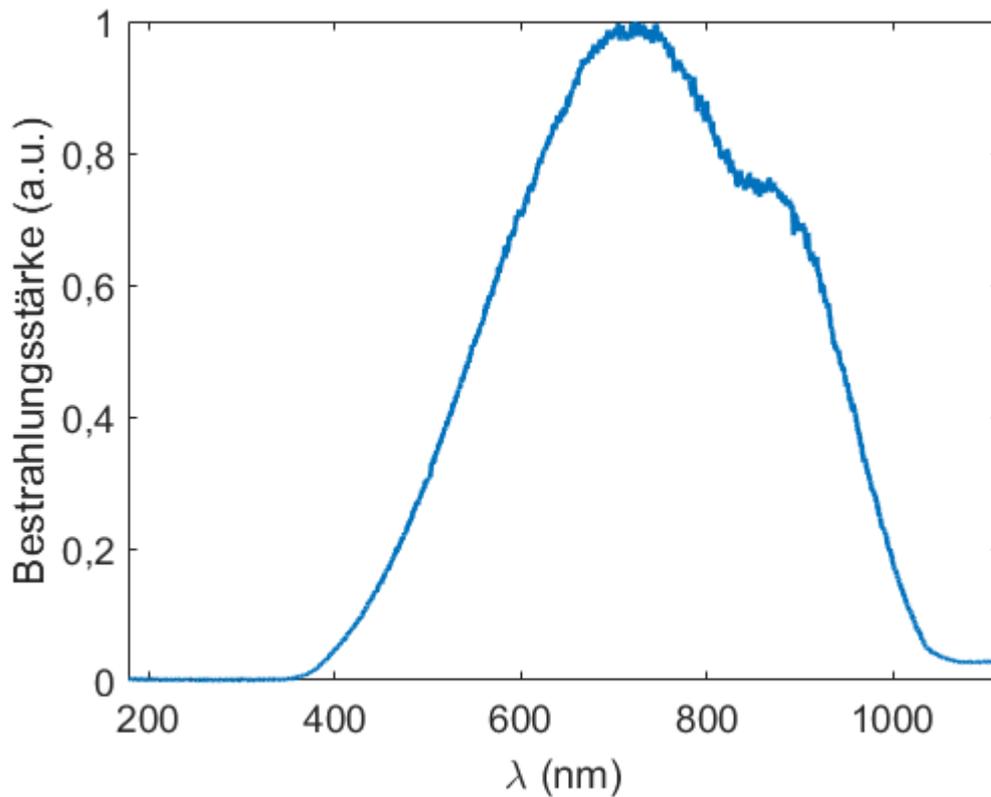


Abbildung 4-2: Spektrum der bekannten Wolframlampe gemessen mit dem zu kalibrierenden Spektrometer.

Der Abfall der Kurve ab etwa 700 nm hängt mit der spektralen Empfindlichkeit der CCD-Kamera des Spektrometers zusammen. Die Abbildung 4-2 zeigt eine Multiplikation aus dem Spektrum der Wolframlampe mit der spektralen Empfindlichkeit der CCD-Kamera und der Transmission des Spektrometers.

Für die weiteren Messungen ist lediglich der Wellenlängenbereich zwischen 550 nm und 750 nm relevant, da größere oder kleinere Wellenlängen durch die Filtrierung des Fluoreszenzsignals nicht berücksichtigt werden. In Abbildung 4-3 sind beide Verteilungen normiert auf die wellenlängenabhängige Bestrahlungsstärke der Messung der Wolframlampe mit dem Spektrometer dargestellt.

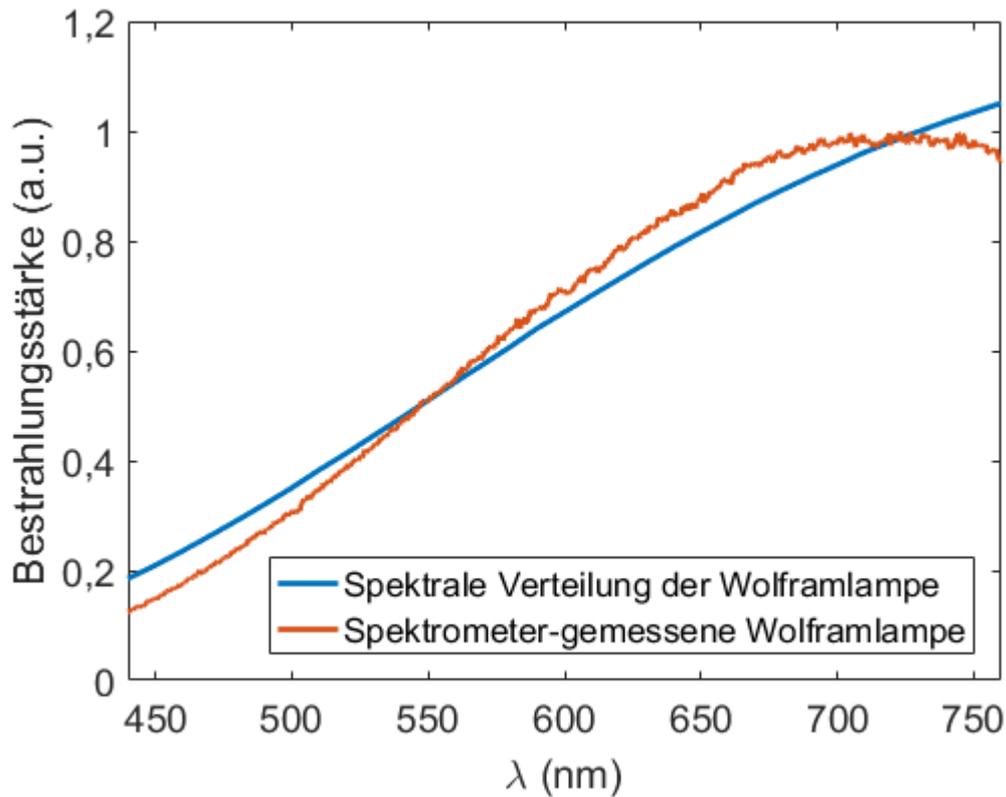


Abbildung 4-3: Spektrale Bestrahlungsstärke der Wolframlampe (blaue Kurve) und Messung der Wolframlampe mit dem Spektrometer (rote Kurve).

Aus der Division der relativen spektralen Bestrahlungsstärke der Wolframlampe (relativ bzgl. der Wellenlänge der maximalen gemessenen Bestrahlungsstärke) und des relativen am Spektrometer gemessenen Spektrums konnte eine Fitfunktion zur Korrektur ermittelt werden. Diese lautet:

$$K(\lambda_K) = 1,18563 \cdot 10^{-8} \cdot \lambda_K^3 - 0,0000115015 \cdot \lambda_K^2 + 5,52778. \quad (38)$$

Um die korrigierte Wellenlänge λ_{GK} zu erhalten, wird der nach Gleichung (38) ermittelte Wellenlängen-spezifische Korrekturfaktor mit der zu korrigierenden Wellenlänge multipliziert:

$$\lambda_{GK} = K(\lambda_K) \cdot \lambda_K. \quad (39)$$

4. 2. Absolute Charakterisierung

Ziel der absoluten Charakterisierung einer Einzelphotonenquelle ist die Ermittlung des absoluten spektralen Photonенflusses, d.h. es soll absolut bestimmt werden, wie viele Photonen pro Zeit- und Wellenlängenintervall ausgesendet werden.

Grundvoraussetzung dafür ist ein Emitter, der nur einzelne Photonen emittiert und bei dem es zu keiner Aussendung von mehreren Photonen kommt. Um einen solchen Emitter zu finden, wurde im ersten Schritt die Diamantprobe gescannt. Ein solcher Scan ($80\ \mu\text{m} \times 80\ \mu\text{m}$) von der Probe mit der Bezeichnung *BRNV07* ist in Abbildung 4-4 gezeigt.

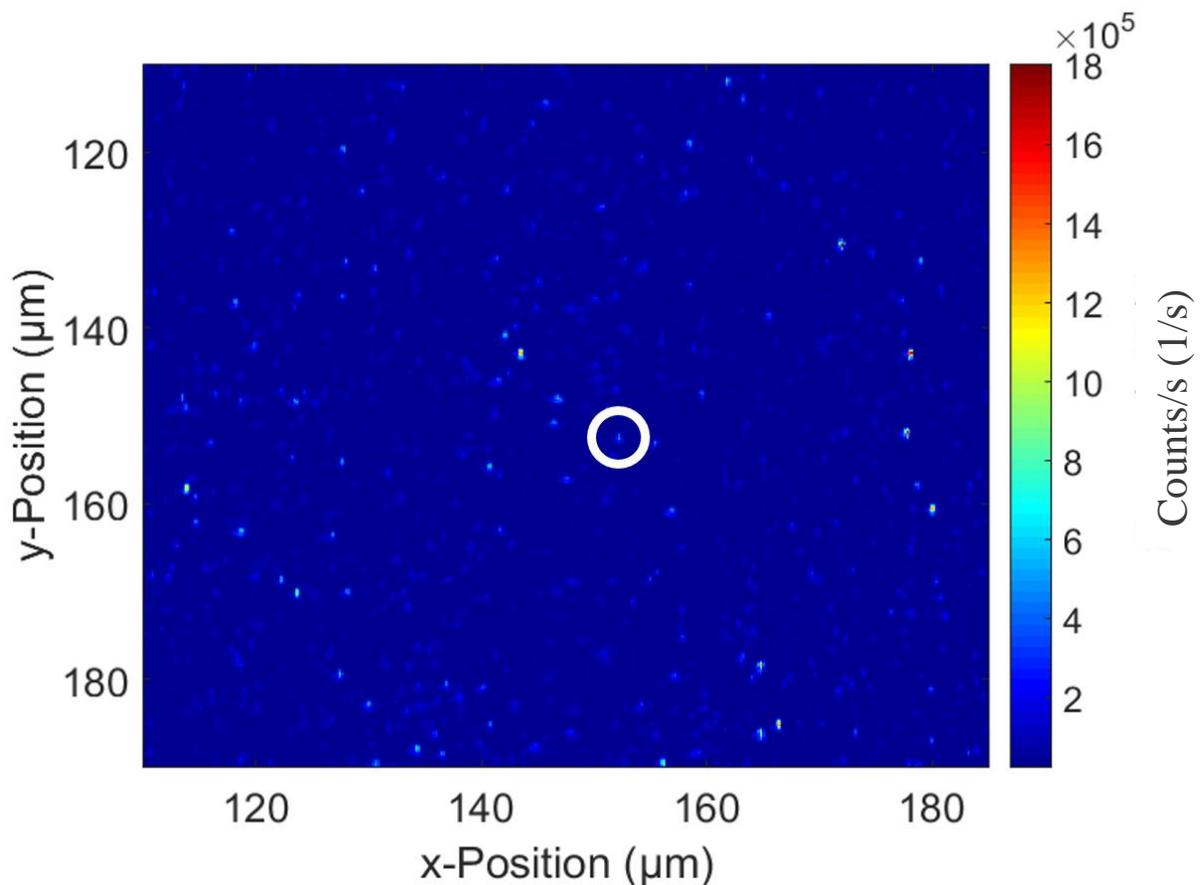


Abbildung 4-4: $80\ \mu\text{m} \times 80\ \mu\text{m}$ Scan der Diamantprobe *BRNV07*. Die weiß umrandete Fluoreszenz einer Stickstofffehlstelle im Nanodiamant wird im Weiteren untersucht [78].

Die Farbkodierung in Abbildung 4-4 gibt Aufschluss über die detektierten Counts pro Sekunde (Detektionen pro Sekunde) am SPAD-Detektor. Der Großteil der Fläche ist dunkelblau und entspricht dem Hintergrundsignal, welches etwa $30.000\ \text{Counts/s}$ stark ist. Alle darauf erscheinenden Punkte, die auf der Farbskala zwischen hellblau und rot liegen, sind Fluoreszenzen aus

NV-Zentren. Dabei kann an dieser Stelle aber noch nicht festgestellt werden, ob es sich um einen reinen Einzelphotonenemitter handelt oder ob diese Fluoreszenz von mehreren NV-Zentren erzeugt wird. Eine solche Fluoreszenz aus mehreren Emittlern entsteht, wenn sich entweder mehrere Stickstofffehlstellen in einem Nanodiamanten befinden oder mindestens zwei Nanodiamanten dotiert mit NV-Zentren so dicht beieinanderliegen, dass ihre Floreszenzen mit dem konfokalen Mikroskop nicht separiert werden können.

Das bedeutet, dass zur Prüfung einer möglichen Einzelphotonenemission die einzelnen Fluoreszenzzentren genauer untersucht werden müssen. Bei weiteren Untersuchungen hat sich ein NV-Zentrum als besonders geeignet hinsichtlich der Qualität der Einzelphotonenemission als auch hinsichtlich der Helligkeit erwiesen. Dieses Zentrum ist in Abbildung 4-4 weiß eingekreist und besitzt eine Zählrate (ermittelt mit dem SPAD) von etwa 530000 Counts/s bei einer Anregungsleistung (gemessen vor dem Mikroskopobjektiv) von 280 μ W.

4. 2. 1. Antibunching-Verhalten

Die Untersuchung der Güte der Einzelphotonenemission wird mit dem Hanbury-Brown & Twiss Interferometer durchgeführt. Hierfür wurde das zu untersuchende Stickstofffehlstellenzentrum im Nanodiamanten mit einer Anregungsleistung von 0,29 mW, gemessen vor dem Mikroskopobjektiv, stimuliert. Das Ergebnis der Messung mit dem HBTI ist in Abbildung 4-5 dargestellt.

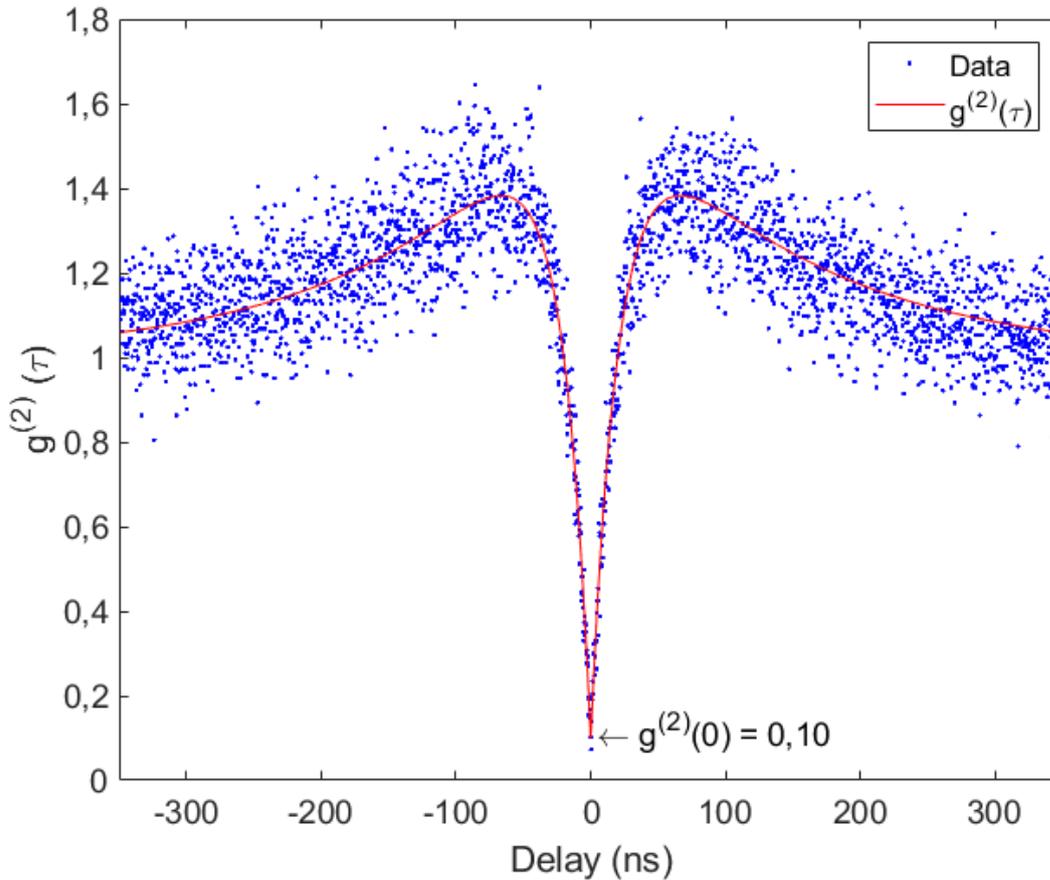


Abbildung 4-5: Messung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung mit dem HBTI (Messpunkte in blau) und Fit der Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Fitkurve); die Anregungsleistung beträgt 0,29 mW nach [67].

Die Messung mit dem HBTI dargestellt in Abbildung 4-5 umfasst die Zeitdifferenzen (Delay) im Bereich von 350 ns vor und 350 ns nach den gleichzeitigen Detektionen an den zwei SPAD-Detektoren. Die normierten Messdaten sind in blau dargestellt. Die Messdaten sind mit folgender Funktion angefitet [53]:

$$g^{(2)}(x) = 1 + c_2 \cdot e^{-|x-x_{\text{off}}| \cdot t_2} + c_3 \cdot e^{-|x-x_{\text{off}}| \cdot t_3} . \quad (40)$$

Die Konstanten ermittelt aus dem Fit nehmen folgende Werte an: Die Amplituden der Niveaus 2 und 3 sind $c_2 = -1,631$; $c_3 = 0,727$. Für die Bestimmung der Lebensdauer in den beiden Energieniveaus 2 und 3 sind die Raten $t_2 = 0,048 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$ und $t_3 = 0,007 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$ bestimmt worden. Der zeitliche Offset beträgt $x_{\text{off}} = 1,227 \cdot 10^{-5} ns$.

Aus der Rate t_i kann mit Hilfe folgender Beziehung die Lebensdauer τ des NV-Zentrums bestimmt werden [79]:

$$\tau_i = \frac{1}{t_i}. \quad (41)$$

Die Lebensdauer im Energieniveau 2, dem angeregten Zustand, ergibt sich somit zu $\tau_2 = 20,9 \text{ ns}$ und die Lebensdauer im Shelving State beträgt $\tau_3 = 142,9 \text{ ns}$.

Zu einer zeitlichen Differenz von 0 ns hat der Fit der Korrelationsfunktion 2. Ordnung sein Minimum und nimmt den Wert 0,10 an. Es ist somit eindeutig, dass es sich um nicht-klassisches Licht handelt. Da bei der Auswertung der Messung der Hintergrund nicht rückwirkend abgezogen wurde, kann bei einer $g^{(2)}(0 \text{ ns}) = 0,10$ davon ausgegangen werden, dass es sich um einen wahren Einzelphotonenemitter handelt.

Als nächstes soll untersucht werden, wie sich die Korrelationsfunktion 2. Ordnung bei höheren Anregungsleistungen verhält. Dafür wurden die Anregungsleistungen (gemessen vor dem Mikroskopobjektiv) von 0,68 mW und 1,055 mW gewählt. Diese Anregungsleistungen wurden gewählt, da ab 1,0 mW die Photonennrate deutlich langsamer zunimmt. Zudem wurde eine weitere Anregungsleistung (0,68 mW) gewählt, die zwischen 0,3 mW und 1,0 mW liegt. Die Messdaten und Korrelationsfunktionen 2. Ordnung sind in Abbildung 4-6 für eine Anregungsleistung von 0,68 mW und Abbildung 4-7 für eine Anregungsleistung von 1,055 mW dargestellt.

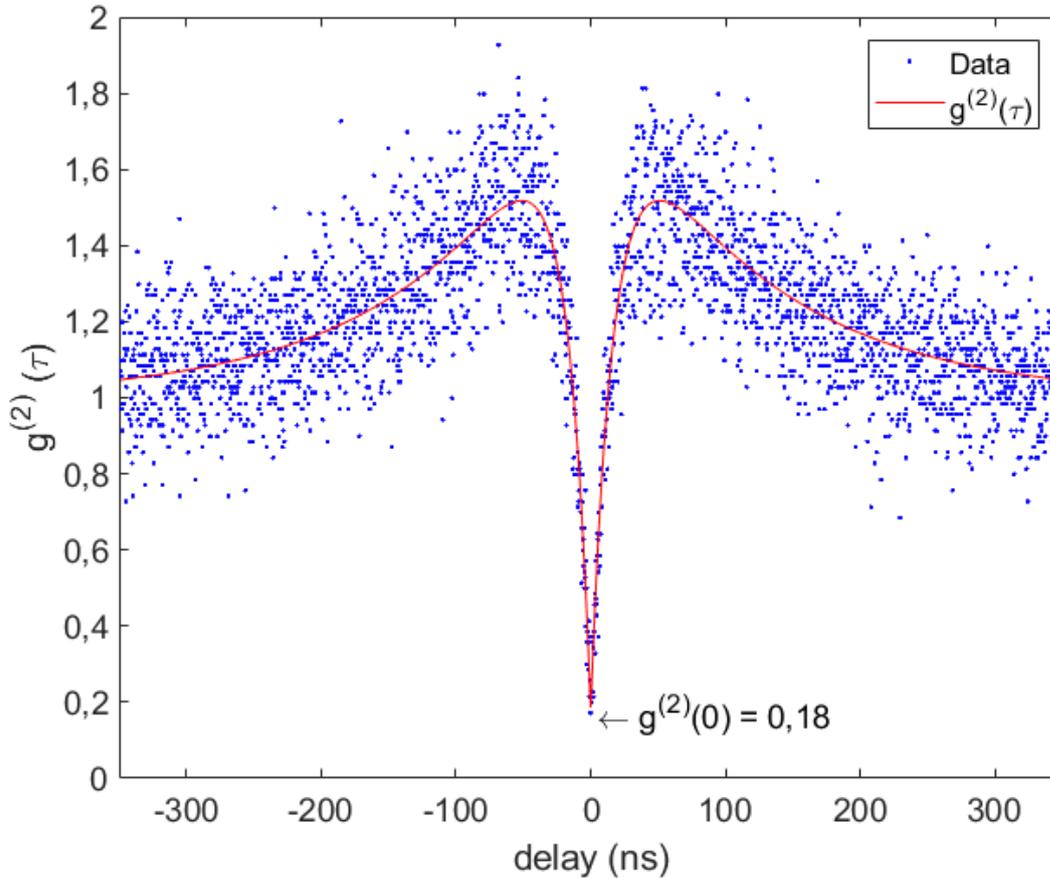


Abbildung 4-6: Messdaten (blaue Punkte) und Fit für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Kurve) für eine Anregungsleistung von 0,68 mW nach [67].

Die Analyse der Korrelationsfunktion 2. Ordnung wurde wie auch für die Anregungsleistung von 0,29 mW mit Gleichung (40) durchgeführt. Dabei ergaben sich folgende Konstanten: $c_2 = -1,762$; $c_3 = 0,941$; $t_2 = 0,058 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$; $t_3 = 0,009 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$; $x_{off} = 1,439 \cdot 10^{-5} ns$. Die Lebensdauer für den angeregten Zustand ergibt sich nach Gleichung (41) zu $\tau_2 = 17,1 ns$ und für den Shelving State zu $\tau_3 = 111,1 ns$. Die $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion nimmt bei einer Zeitdifferenz von 0 ns den Wert 0,18 an. Damit ist der Wert noch immer deutlich kleiner als 0,5 und somit gilt das Fluoreszenzsignal als nichtklassisches Licht. Die Änderung bzw. Erhöhung dieses Wertes hängt mit zwei Dingen zusammen. Zum einen steigt der Hintergrund linear an. Dieser ist wie auch schon bei der Anregungsleistung von 0,29 mW nicht rechnerisch aus den Messdaten entfernt worden. Zum anderen zeigt sich eine deutliche Überhöhung zwischen +/- 150 ns und 0 ns. Dies wird hervorgerufen durch den zunehmenden Einfluss des Shelving States, was sich

wiederum in einer Erhöhung des Minimums der Korrelationsfunktion 2. Ordnung und auf eine Verkürzung der Lebensdauer des NV-Zentrums auswirkt.

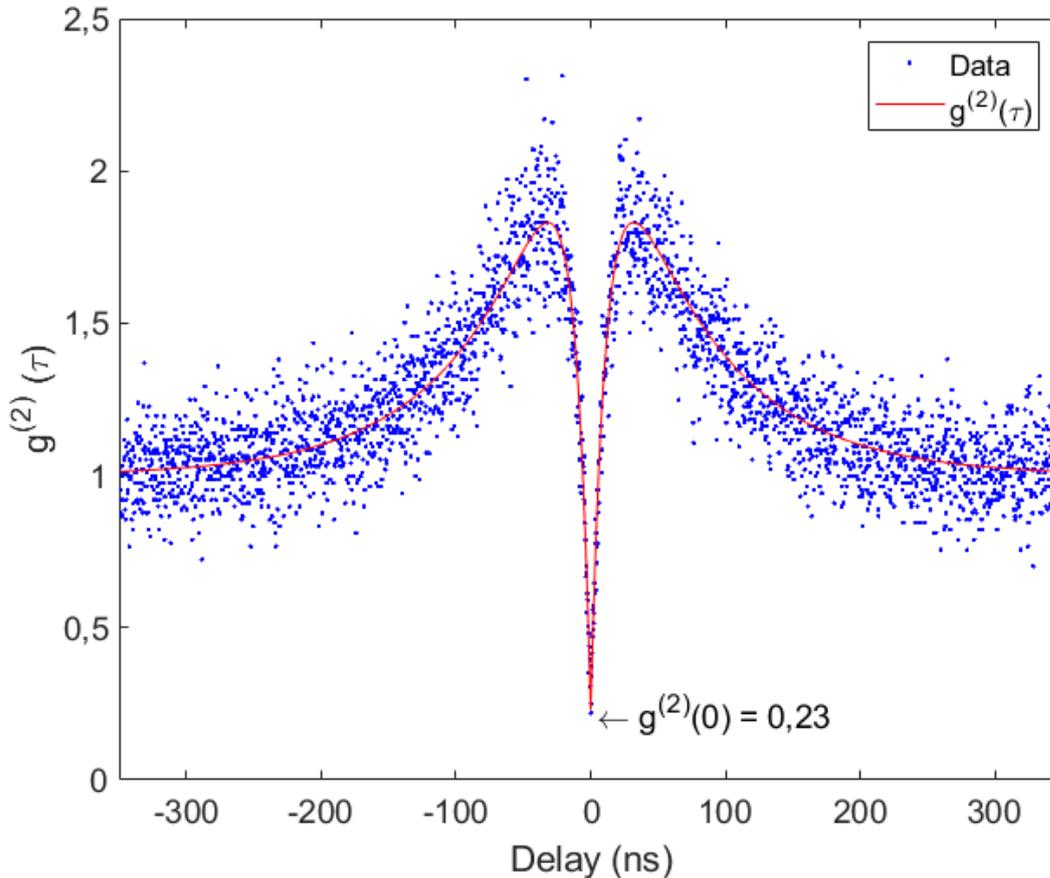


Abbildung 4-7: Messdaten (blaue Punkte) und Fit für die Korrelationsfunktion 2. Ordnung (rote Kurve) für eine Anregungsleistung von 1,055 mW nach [67].

Die Konstanten für die Ermittlung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung für die Messung mit einer Anregungsleistung von 1,055 mW haben folgende Werte: Die Amplituden des angeregten Zustands und des Shelving State sind $c_2 = -2,300$ und $c_3 = 1,527$. Die inversen Lebensdauern der Zustände sind bestimmt worden zu $t_2 = 0,084 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$ und $t_3 = 0,0136 \cdot 10^{-9} \frac{1}{s}$. Der zeitliche Offset nimmt einen Wert von $x_{off} = -4,471 \cdot 10^{-5} ns$ an.

Die berechnete Lebensdauer für den angeregten Zustand beträgt nach Gleichung (41) $\tau_2 = 11,9 ns$ und für den Shelving State $\tau_3 = 73,5 ns$. Das Minimum der Korrelationsfunktion 2. Ordnung liegt bei 0,23. Auch in diesem Fall wurde keine Hintergrundsubtrahierung vorgenom-

men. Zudem wirkt sich der Shelving State stärker aus als bei den niedrigeren Anregungsleistungen. Sowohl die Hintergrundemission als auch der Einfluss des Shelving State wirken sich auf das Minimum der Korrelationsfunktion 2. Ordnung aus, was zu einer weiteren Erhöhung führt, und auf eine weitere Verkürzung der Lebenszeit im angeregten Zustand aus. Da die Erhöhung der Korrelationsfunktion auf diese Gründe zurückzuführen ist, wird weiterhin davon ausgegangen, dass es sich auch bei höheren Anregungsleistungen weiterhin um eine Einzelphotonenquelle handelt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass gezeigt werden konnte, dass der Stickstofffehlstellenbasierte Einzelphotonenemitter bei allen drei Anregungsleistungen nichtklassisches Licht ausstrahlt. Es wird davon ausgegangen, dass es bei diesem NV-Zentrum um einen reinen Einzelphotonenemitter handelt. Mit steigender Anregungsleistung steigt auch der Einfluss des Shelving State im System, was sich an einer Überhöhung der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion zwischen den Zeitdifferenzen von +/- 150 ns und 0 ns zeigt. Damit verbunden steigt der Wert für $g^{(2)}(0 \text{ ns})$ und die Lebensdauer des angeregten Zustands des NV-Zentrums verringert sich. Zudem verringern sich auch die Lebensdauern im Shelving State mit wachsenden Anregungsleistungen.

4. 2. 2. Spektrum

Das Spektrum des NV-Zentrums wurde mit dem kalibrierten Spektrometer aufgenommen (siehe Abbildung 4-8). Aufgrund der Breite des Emissionsspektrums wurden die Standard Einstellungen verwendet (Gitter 3, 1 mm Öffnungsspalt, 10 s Integrationszeit). Um die Schwankungen durch das Rauschen des Spektrometerdetektors zu verringern, ist ein Glättungsfilter über das Signal gelegt worden. Dabei wurde die Matlab Routine „smooth“ verwendet. Diese bildet den sich mitbewegenden Mittelwert über eine gewisse Spanne von Werten. Die Spanne wurde auf 5 Werte festgelegt.

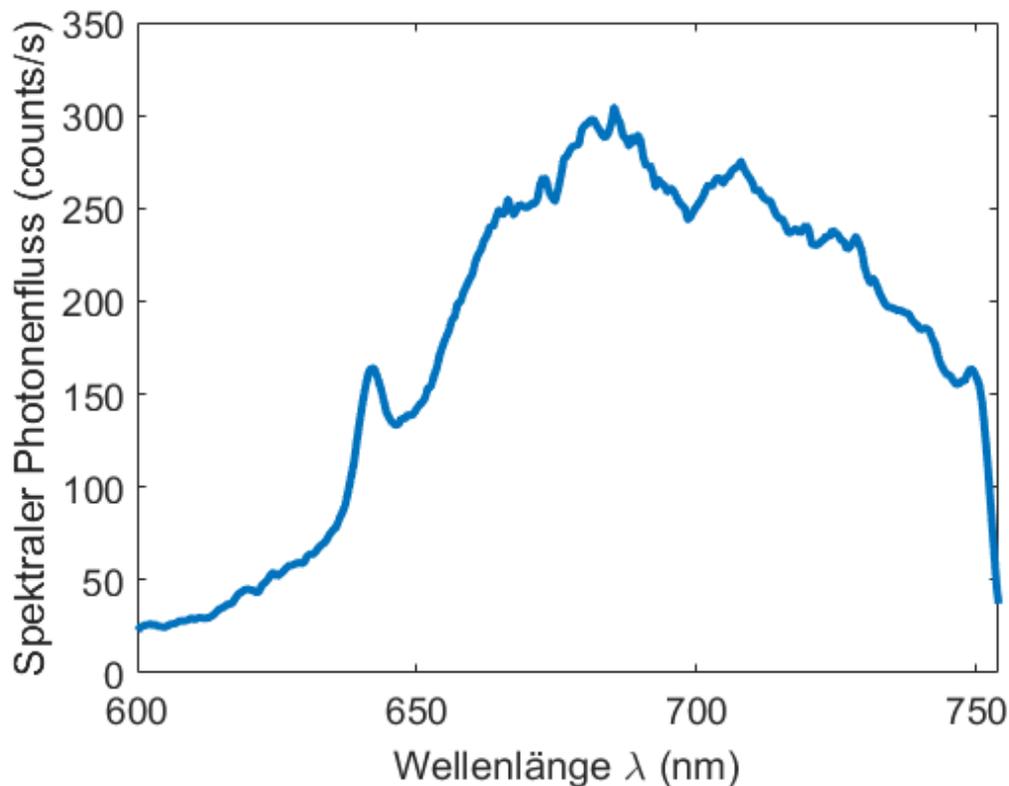


Abbildung 4-8: Spektrale Verteilung des Einzelphotonenemitters.

Das Spektrum zeigt den typischen Verlauf für NV-Zentren. Der abrupte Einbruch bei 750 nm ist auf die Filtrierung mit dem Kantenfilter zurückzuführen. Die charakteristische NV⁻-Linie (ZPL) zeigt sich bei 641 nm. Die Verschiebung der ZPL um 4 nm von Literaturwert 637 nm [17], [27] kann wahrscheinlich auf Verspannungen im Diamantkristall zurückgeführt werden.

4. 2. 3. Modell und Berechnung der absoluten Einzelphotonenquelle

Ziel der absoluten Charakterisierung ist die Bestimmung des absoluten spektralen Strahlungsflusses und des absoluten spektralen Photonflusses der Einzelphotonenquelle. Für die Berechnung sind zwei Messungen essentiell. Zum einen muss die relative spektrale Verteilung pro Wellenlänge des NV-Zentrums bekannt sein und zum anderen ist die Messung des Ausgangssignals U_{out} des LOFDs notwendig.

Die Ausgangsspannung des LOFDs U_{out} ist proportional zum Photostrom I_{det} , der durch die Absorption von Photonen hervorgerufen wird [67]:

$$U_{\text{out}} = \frac{I_{\text{det}} t_{\text{int}}}{C_{\text{int}}}. \quad (42)$$

Die Integrationszeit t_{int} ($t_{\text{int}} = 1 \text{ s}$) und die Integrationskapazität C_{int} ($C_{\text{int}} = 1,045 \text{ pF} \pm 0,001 \text{ pF}$) sind konstant (siehe Referenz [74]).

Die spektrale Empfindlichkeit (Abbildung 3-9) des LOFDs ist rückgeführt auf das Kryoradiometer des CMI. Da das NV-Zentrum ein breitbandiges Spektrum aufweist, muss die effektive spektrale Empfindlichkeit s_{spec} aus der spektralen Empfindlichkeit des LOFDs und der relativen spektralen Verteilung des NV-Zentrums berechnet werden. Zur Bestimmung der relativen spektralen Leistungsverteilung der NV-Emission wird die spektrale Verteilung einer Einzelpotonenemission S_{NV} normiert [67]:

$$\begin{aligned} S_{\text{rel}}(\lambda) &= \frac{S_{\text{NV}}(\lambda)}{\int S_{\text{NV}}(\lambda) d\lambda} \\ &\cong \frac{S_{\text{NV}}(\lambda)}{\sum_{\lambda_i} S_{\text{NV}}(\lambda) (\lambda_{i+1} - \lambda_i)} \\ &= \frac{S_{\text{NV}}(\lambda)}{S_{\text{NVTot}}}. \end{aligned} \quad (43)$$

Die spektrale Verteilung S_{NV} ist mit einem Spektrometer gemessen worden, welches zuvor kalibriert wurde. Die spektrale Bestrahlungsstärke der Wolframlampe, welche Teil der Kalibrierung war, ist wiederum zurückgeführt auf den Schwarzkörperstrahler. Dies erfolgte in der Arbeitsgruppe „Spektroradiometrie“ der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt.

Die effektive spektrale Empfindlichkeit lässt sich nun wie folgt berechnen [67]:

$$\begin{aligned} s_{\text{spec}} &= \int S_{\text{rel}}(\lambda) s_{\text{det}}(\lambda) d\lambda \\ &\cong \sum_{\lambda_i} S_{\text{rel}}(\lambda) s_{\text{det}}(\lambda) (\lambda_{i+1} - \lambda_i). \end{aligned} \quad (44)$$

Der optische Strahlungsfluss Φ ist der Quotient aus dem Photostrom und der effektiven spektralen Empfindlichkeit und berechnet sich wie folgt [67]:

$$\Phi = \frac{I_{\text{det}}}{s_{\text{spec}}} = \frac{U_{\text{out}} C_{\text{int}}}{s_{\text{spec}} t_{\text{int}}}. \quad (45)$$

Nun kann aus dem optischen Strahlungsfluss Φ unter Berücksichtigung der durchschnittlichen Photonenenergie die Anzahl der Photonen pro Sekunde und Wellenlänge N_{ph} bestimmt werden [67]:

$$N_{\text{ph}} = \frac{\Phi}{e_{\text{spec}}} . \quad (46)$$

Notwendig hierzu ist allerdings die Berechnung der durchschnittlichen Photonenenergie e_{spec} [67]:

$$\begin{aligned} e_{\text{spec}} &= \int \frac{hc}{\lambda} S_{\text{rel}}(\lambda) d\lambda \\ &\cong \sum_{\lambda_i} \frac{hc}{\lambda_i} S_{\text{rel}}(\lambda_i) (\lambda_{i+1} - \lambda_i) , \end{aligned} \quad (47)$$

wobei h die Planck Konstante und c die Lichtgeschwindigkeit ist.

Zudem ist e_{ph} die Energie eines Photons für eine bestimmte Wellenlänge, die sich wie folgt berechnen lässt [67]:

$$e_{\text{ph}}(\lambda) = \frac{hc}{\lambda} . \quad (48)$$

Der Strahlungsfluss pro Wellenlänge $\Phi_{\lambda}(\lambda)$ ist das Produkt aus dem optischen Strahlungsfluss Φ und der relativen spektralen Verteilung des NV-Zentrums [67]

$$\Phi_{\lambda}(\lambda) = \Phi S_{\text{rel}}(\lambda) . \quad (49)$$

Aus dem Strahlungsfluss pro Wellenlänge $\Phi_{\lambda}(\lambda)$ dividiert mit der wellenabhängigen Energie eines Photons e_{ph} , ergibt sich der absolute spektrale Strahlungsfluss $N_{\text{ph},\lambda}(\lambda)$ zu [67]

$$N_{\text{ph},\lambda}(\lambda) = \frac{\Phi_{\lambda}(\lambda)}{e_{\text{ph}}(\lambda)} . \quad (50)$$

Die benötigten Berechnungen bzw. Rechnungsschritte für die absolute Charakterisierung einer Einzelphotonenquelle sowie die ununterbrochene Rückführungskette zu den Primärnormalen ist in Abbildung 4-9 schematisch dargestellt.

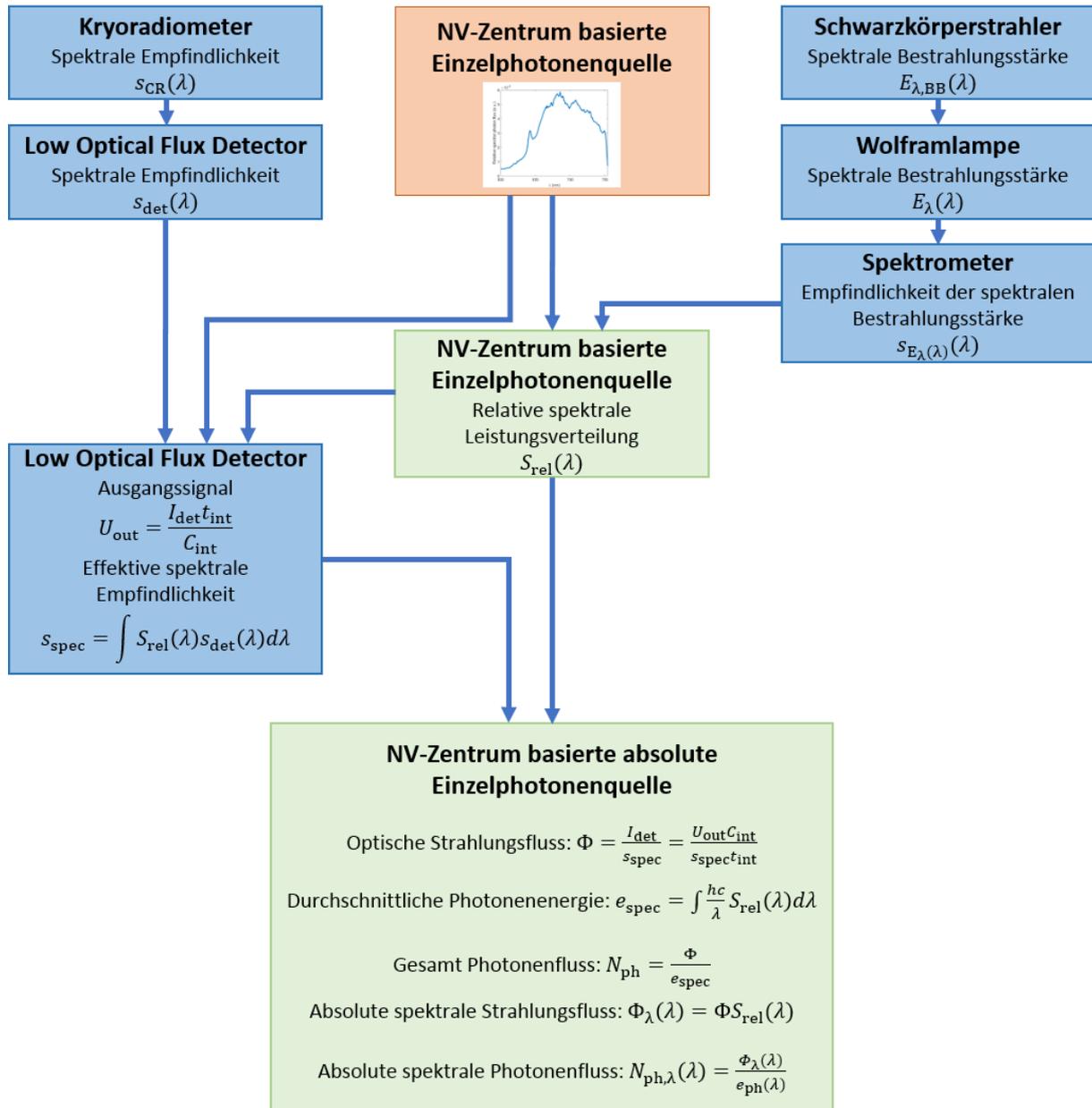


Abbildung 4-9: Rückführungskette zu den Primärnormalen für die absolute Charakterisierung einer Einzelphotonenquelle basierend auf einem NV-Zentrum. Die Kästen, die für die verwendeten Geräte stehen, sind blau hinterlegt, grüne Flächen indizieren Berechnungen und eine orange Hinterlegung zeigt das Messobjekt an nach [67].

Anhand von Gleichung (44) und Gleichung (47) wurden die effektive spektrale Empfindlichkeit s_{spec} und die durchschnittliche Photonenenergie e_{spec} für eine Anregungsleistung von $274 \mu W$ wie folgt bestimmt [67]:

$$s_{spec} = 0,33798 \frac{A}{W}, \quad (51)$$

und [67]

$$e_{\text{spec}} = 2,8855 \cdot 10^{-19} \text{ J} . \quad (52)$$

Anhand dieser Ergebnisse konnte der absolute spektrale Photonenfluss und der absolute spektrale Strahlungsfluss bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4-10 für den gesamten Spektralbereich des NV-Zentrums dargestellt.

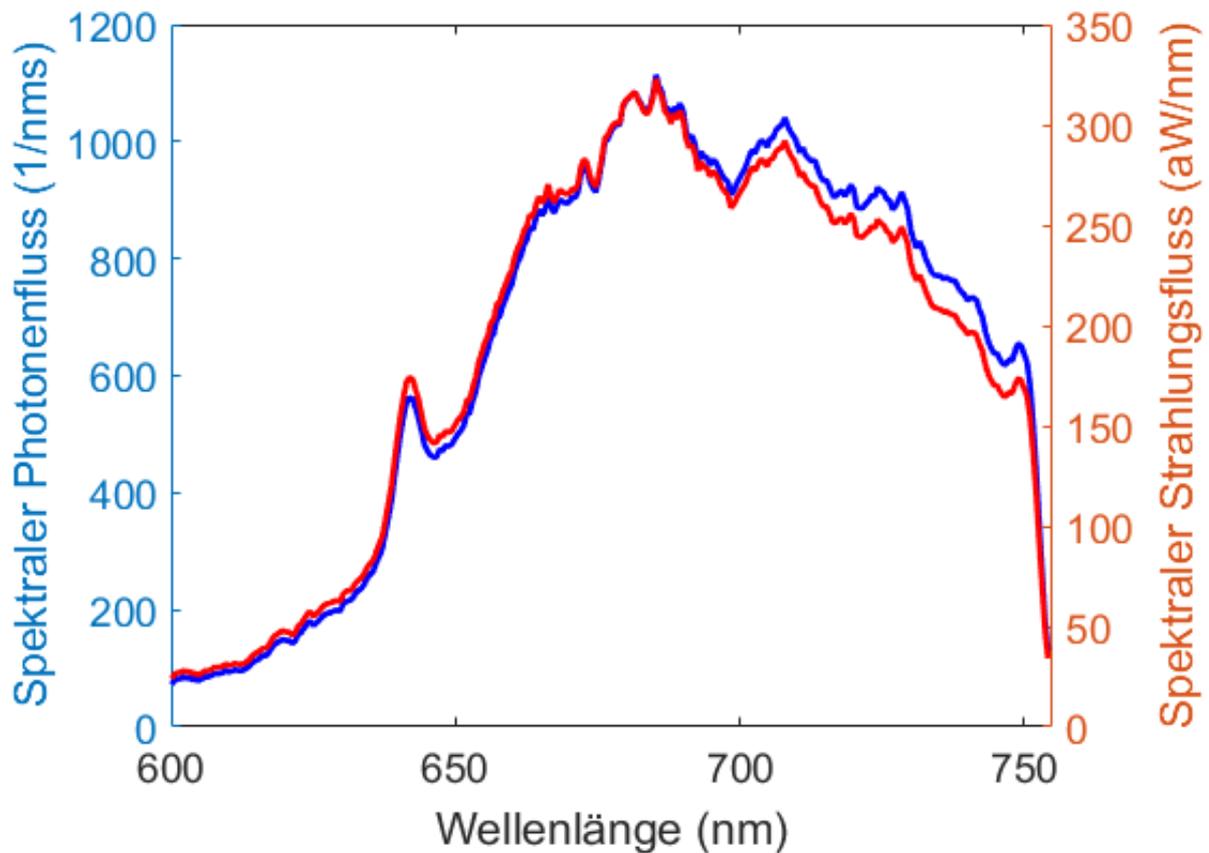


Abbildung 4-10: Darstellung des absoluten spektralen Photonenflusses (blaue Kurve) und des absoluten spektralen Strahlungsflusses (rote Kurve) eines NV-Zentrums [67].

Ausgehend von den Ergebnissen in Abbildung 4-10 ist es nun möglich den absoluten Photonenfluss in Photonen pro Wellenlänge und pro Sekunde bzw. den entsprechenden absoluten Strahlungsfluss in 10^{-18} W pro Wellenlänge zu ermitteln. So werden von dem Einzelphotonemitter z. B. bei einer Wellenlänge von 700 nm etwa 1000 Photonen pro Sekunde und pro Nanometer ausgesendet. Die Bestimmung der beigeordneten Messunsicherheit wird in Kapitel 5 beschrieben.

4. 2. 4. Photonenfluss

Im Weiteren soll nun untersucht werden, wie sich der Photonenfluss der Einzelphotonenfluoreszenz in Abhängigkeit von der Anregungsleistung verhält (siehe Abbildung 4-11). Die Messung des Photonenflusses erfolgte über die Messung mit dem LOFD. Die rechte Achsenbetitelung zeigt die gemessene optische Leistung und die linke Achsenbetitelung den berechneten Photonenfluss pro Sekunde. Für die Messung bei einer Anregungsleistung sind etwa 180 Messwerte aufgenommen und gemittelt worden. Der Mittelwert der Messwerte sowie die dazugehörige Standardabweichung sind in der Abbildung in Form von Punkten mit Fehlerbalken dargestellt.

Die Messpunkte können mit Hilfe folgender Gleichung angenähert werden [80]:

$$N_{\text{ph}} = \frac{N_{\text{Sat}}}{1 + \frac{P_{\text{Sat}}}{P}} + mP . \quad (53)$$

Mit N_{ph} : Photonenfluss, N_{sat} : Sättigungsphotonenfluss, P_{sat} : Sättigungsanregungsleistung, P : Anregungsleistung und m : Faktor für die Hintergrundemission.

Für den Fit (rote Kurve) sind folgende Fitparameter verwendet worden: $N_{\text{sat}} = 240000 \text{ s}^{-1}$, $P_{\text{sat}} = 100 \text{ } \mu\text{W}$ und $m = 27,6 \text{ } \mu\text{W}^{-1}\text{s}^{-1}$ [67].

Bei dieser Messung muss allerdings berücksichtigt werden, dass der Hintergrund linear mit der Anregungsleistung steigt (Term mP). Der lineare Anstieg des Hintergrunds wurde unabhängig von dieser Messung an derselben NV-Probe nachvollzogen. Die Messung ist im Anhang in Abbildung 8-1 hinterlegt.

Wird der Hintergrund von dem Fit für die Messwerte abgezogen, ergibt sich eine Kurve, die nach folgender Gleichung bestimmt werden kann [67]:

$$N_{\text{ph}} = \frac{N_{\text{Sat}}}{1 + \frac{P_{\text{Sat}}}{P}} . \quad (54)$$

Diese Kurve beschreibt die Emission, die lediglich durch die NV-Zentren ohne die Hintergrundemission hervorgerufen wurde (grüne Kurve in Abbildung 4-11).

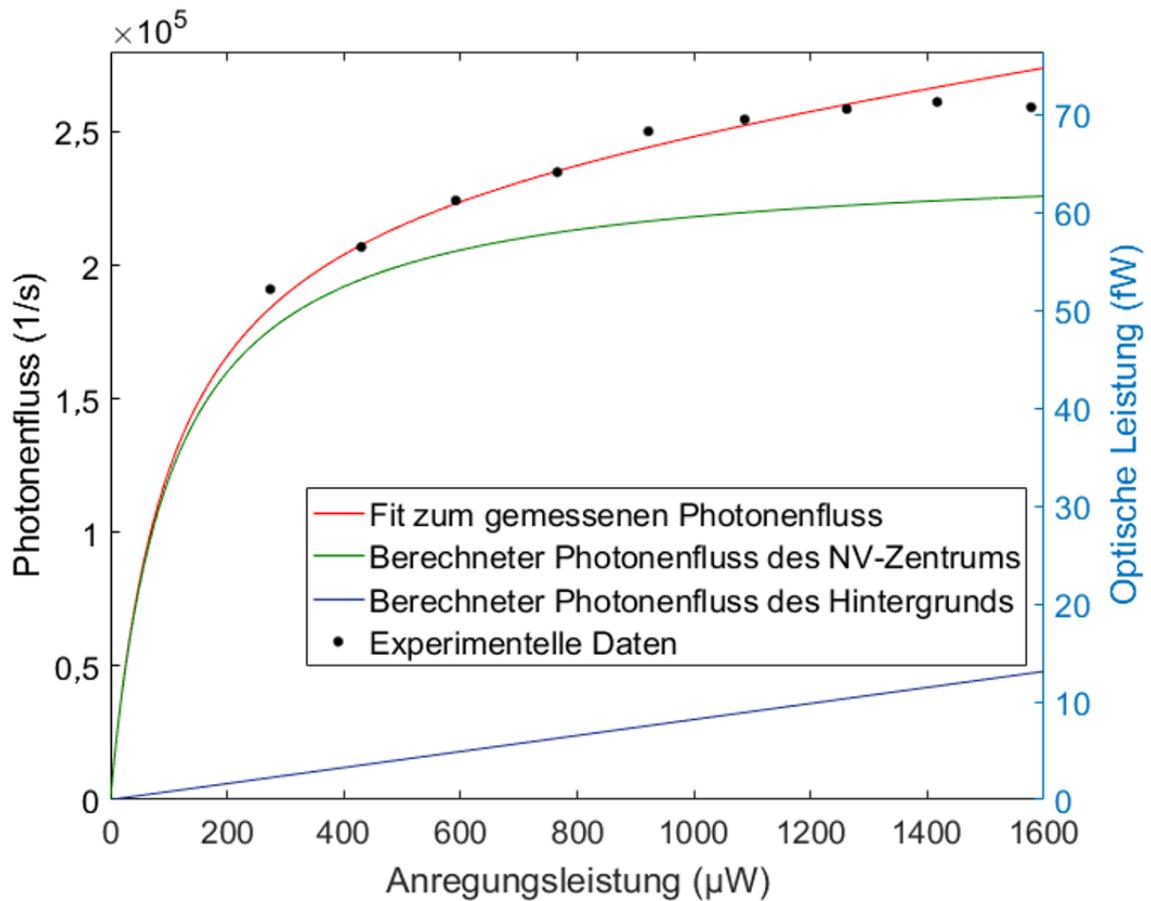


Abbildung 4-11: Photonenfluss bzw. optische Leistung in Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Die Messpunkte (schwarze Punkte) werden von einem Fit (rote Kurve) widerspiegelt. Wird der Hintergrund (blaue Kurve) von dem Fit abgezogen, erhält man den Photonenfluss ohne Hintergrundstrahlung (grüne Kurve) nach [67].

Es wird deutlich, dass die pure Emission des Stickstofffehlstellenzentrums mit zunehmender Anregungsleistung erst ansteigt und anschließend in einen Bereich übergeht, in dem der Anstieg gegen null geht. Das bedeutet, dass das NV-Zentrum für hohe Anregungsleistungen größer als 1000 μW in eine Art Sättigung geht. Ab einer bestimmten Anregungsleistung verändert sich somit die Anzahl der emittierten Photonen nur noch sehr geringfügig. Für schwächere Anregungen ist die Emissionsleistung der Quelle über die Anregungsleistung einstellbar, für stärkere Anregungen ist dies nur bedingt der Fall. Es können optische Leistungen zwischen 55 fW und 75 fW emittiert werden, was etwa 190 000 Photonen pro Sekunde bzw. 260 000 Photonen pro Sekunde entspricht [67].

Es zeigt sich zudem, dass der Messbereich des Photonenflusses sowie der Hintergrund in der Messung mit dem LOFD geringer sind als in der Messung mit dem SPAD. Das ist mit verschiedenen Messverfahren zu erklären. Denn bei der Messung mit dem SPAD wird die Glasfaser

direkt an den Detektor angeschlossen, während bei dem Verfahren mit dem LOFD zwei weitere Mikroskopobjektive verbaut sind, die die Transmission mindern.

4.3. Winkelabhängige Abstrahlcharakteristik von NV-Zentren

Im Folgenden soll die Abstrahlcharakteristik eines NV-Zentrums untersucht werden. Es wird zunächst davon ausgegangen, dass die Emission des NV-Zentrums im Nanodiamanten isotrop in alle Raumrichtungen abstrahlt. Die verwendeten NV-dotierten Nanodiamanten sind direkt auf Mikroskopdeckgläser aufgebracht. Das Deckglas selbst ist dabei eine dielektrische Struktur, die in diesem Zusammenhang der Emission eine Vorzugsrichtung vorgibt. Die Abstrahlcharakteristik soll in den anschließenden Kapiteln sowohl berechnet als auch experimentell untersucht werden.

4.3.1. Theoretische Betrachtung der Abstrahlung des NV-Zentrums

Im einfachsten Fall der theoretischen Betrachtung der Abstrahlcharakteristik wird davon ausgegangen, dass der Dipol senkrecht auf der Grenzschicht zwischen Luft und Deckglas steht und vollständig von Luft umgeben ist. Der zu untersuchende Bereich wird in drei Abschnitte unterteilt. Zum einen muss unterschieden werden, ob die Abstrahlung in Glas ($0^\circ \leq \alpha \leq 90^\circ$) oder in Luft ($90^\circ < \alpha \leq 180^\circ$) erfolgt.

Da die Ausmaße des Nanodiamanten (ca. 75 nm) deutlich kleiner sind als dessen Emissionswellenlängen in Luft (550 nm bis 750 nm), spielt die Totalreflexion im Diamantkristall keine Rolle für die Berechnung der Abstrahlcharakteristik. Allerdings muss die Totalreflexion für Winkel größer dem kritischen Winkel im Glas berücksichtigt werden. Daher wird innerhalb des Glases in zwei weitere Bereiche unterschieden, die durch den kritischen Winkel getrennt sind. Die Berechnung der Abstrahlung erfolgt gemäß Kapitel 2.4.1. und nach Referenz [65]. Der kritische Winkel berechnet sich nach Gleichung (17). Der Brechungsindex des Deckglases wird mit $n_2 = 1,53$ angenommen und der Brechungsindex von Luft wird mit $n_1 = 1$ angenähert. Damit ergibt sich ein kritischer Winkel von $41,0^\circ$. Für eine Dipolabstrahlung ins Glas für Winkel kleiner gleich dem kritischen Winkel ($0^\circ \leq \alpha \leq 41,0^\circ$) wird für die elektrische Dipolkomponente die Gleichung (21) verwendet. Für Winkel größer als den kritischen Winkel bis einschließlich 90° ($41,0^\circ < \alpha \leq 90^\circ$) wird die elektrische Komponente der Dipolabstrahlung

mit Gleichung (24) beschrieben und für den elektrischen Anteil der Dipolstrahlung für die Abstrahlung in Luft ($90^\circ < \alpha \leq 180^\circ$) gilt Gleichung (28).

Die Simulation der elektrischen Komponente der Dipolabstrahlung für den Winkelbereich von 0° bis 180° ist in Abbildung 4-12 dargestellt.

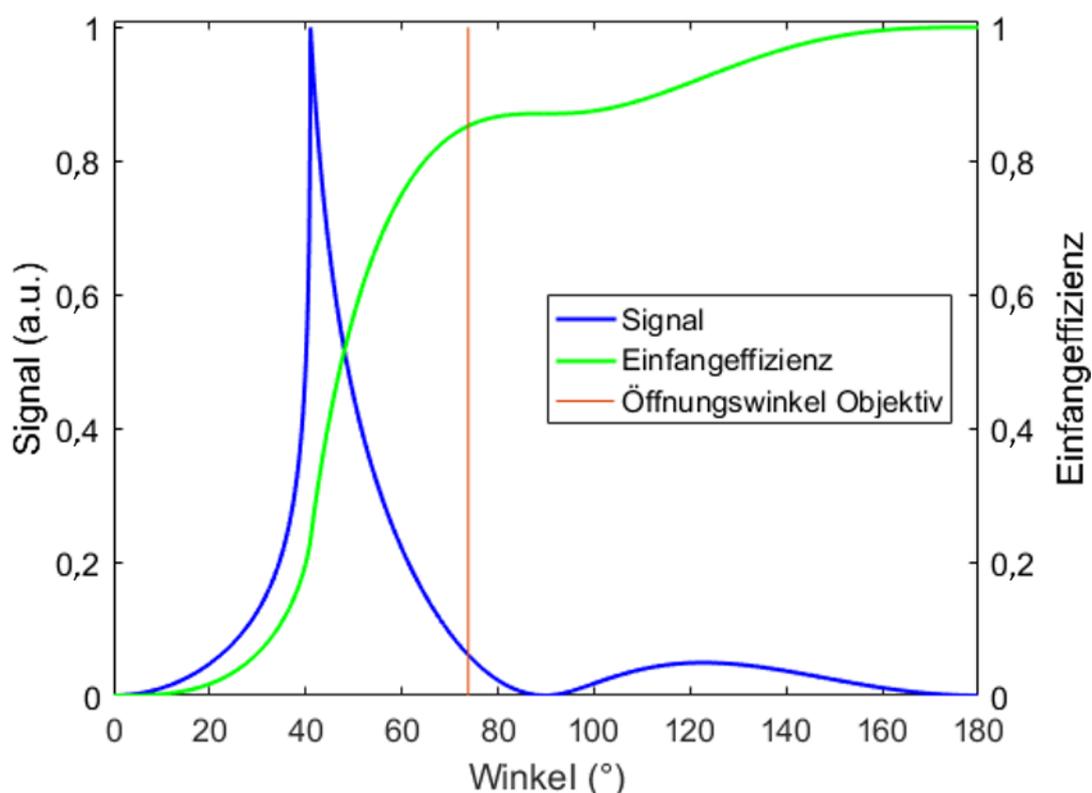


Abbildung 4-12: Berechnete Dipolabstrahlung („Signal“, elektrische Komponente) für den Winkelbereich von 0° bis 180° (blaue Kurve). Der Bereich von 0° bis 90° beschreibt die Abstrahlung in das Deckglas und der Bereich von 90° bis 180° stellt die Abstrahlung in Luft dar. In grün ist die Einfangeffizienz dargestellt, sie ist die Integration über die berechnete Dipolabstrahlung. Der berechnete Öffnungswinkel des Mikroskopobjektivs ist in Form der orangenen senkrechten Linie illustriert nach [67].

Das berechnete Fluoreszenzsignal (blaue Kurve in Abbildung 4-12) in Medium 1, dem Deckglas, hat nach einem steilen Anstieg von 0 bei 0° ein Maximum bei 41° . Anschließend verringert sich die Intensität der Fluoreszenz mit wachsendem Winkel und nimmt bei 90° wieder den Wert 0 an. In Medium 2 (Luft) steigt das Fluoreszenzsignal wieder an, allerdings deutlich geringer als in Medium 1 und erreicht bei etwa 123° ein zweites Maximum, welches allerdings deutlich schwächer ausgeprägt ist als das Maximum in Medium 1.

Somit wird lediglich ein vergleichbar kleiner Teil des Fluoreszenzsignals in die Luft abgestrahlt, der Großteil der Photonen wird in das Glas emittiert. Dies verdeutlicht auch die Einfangeffizienz (grüne Kurve), denn etwa 87 % der Emission gehen in den Winkelbereich kleiner gleich 90° und somit ins Deckglas. An dieser Stelle muss nun der Öffnungswinkel der verwendeten Mikroskopobjektivs ($\alpha_{\text{Öffnung}}$) betrachtet werden. Dieser lässt sich anhand der numerischen Apertur des Objektivs ($N.A. = 1,45$) und des Brechungsindex des Mediums, das sich zwischen Objekt und Objektiv befindet, in diesem Fall ein Immersionsöl von Carl-Zeiss ($n_{\text{Öl}} = 1,518$), bestimmen nach folgender Gleichung [61]:

$$\alpha_{\text{Öffnung}} = \arcsin\left(\frac{N.A.}{n_{\text{Öl}}}\right) = 72,8^\circ . \quad (55)$$

Der Öffnungswinkel des Mikroskopobjektivs ist in Form einer senkrechten Linie in Abbildung 4-12 eingetragen, um zu verdeutlichen, wie hoch der Anteil der eingesammelten Effizienz ist. Dieser liegt bei etwa 85 % der Gesamtemission.

Zudem ist in Abbildung 4-13 a) die Emission der Einzelphotonenquelle für den gesamten Winkelbereich bis 360° in Polarkoordinaten dargestellt. Außerdem zeigen die Bildabschnitte b) und c) die Dipolorientierung zum einen bzgl. der Probe und als Nahaufnahme bzgl. der Darstellung in a).

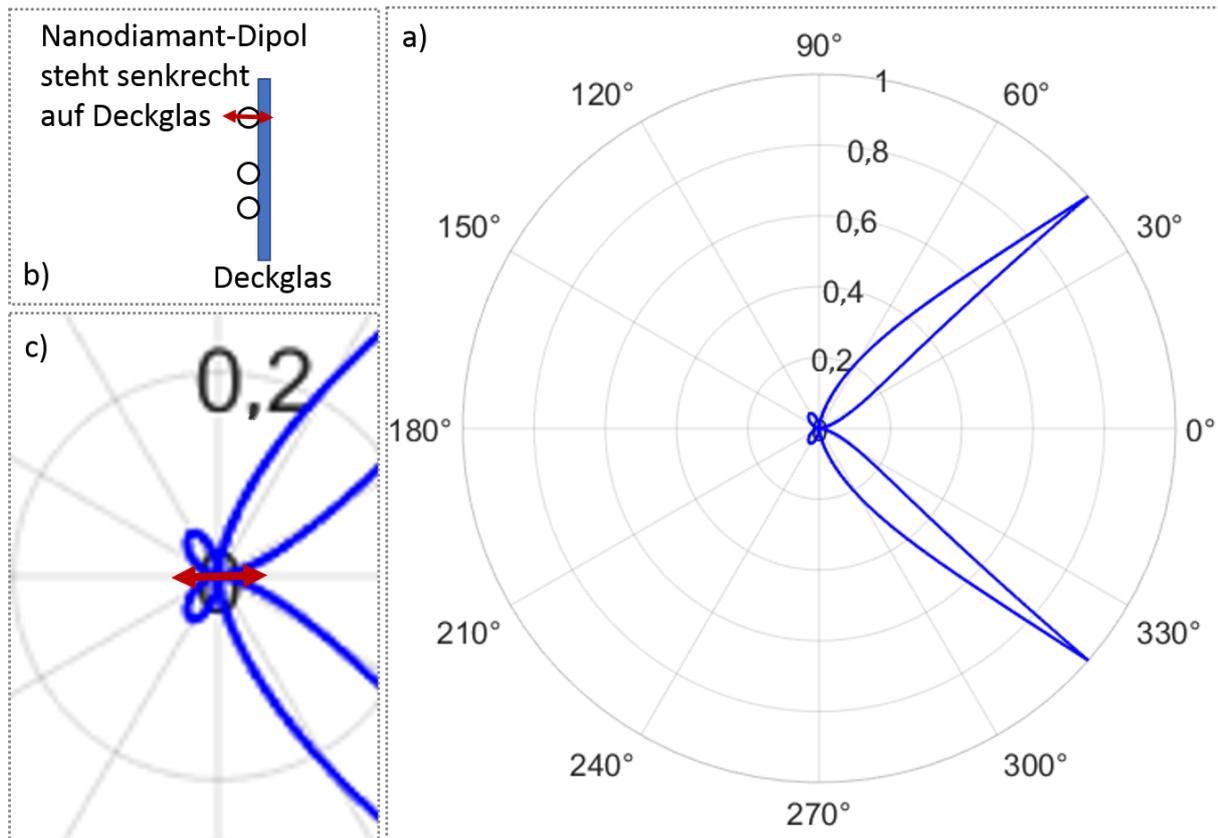


Abbildung 4-13: a) Darstellung der elektrischen Dipolabstrahlung in Polarkoordinaten. Die Darstellung umfasst den gesamten Winkelbereich von 0° bis 360°. Die Intensität der Emission ist entlang der r-Koordinate aufgetragen. Zur Verdeutlichung des Betrachtungswinkels und der Lage des Dipols ist in b) bezüglich der Berechnung die Position der Probe dargestellt und c) zeigt eine Nahaufnahme der Emission im Bereich der Grenzschicht. Die Dipolorientierung ist in b) und c) mit roten doppelseitigen Pfeilen veranschaulicht. Die Darstellung ist nicht maßstabsgetreu.

Die Berechnung sowohl für den senkrechten zur Grenzfläche stehenden Dipols als auch für den parallel zur Grenzschicht liegenden Dipol bei verschiedenen Abständen zur Grenzfläche sind im Anhang in der Abbildung 8-2, Abbildung 8-3 sowie Abbildung 8-4 dargestellt.

4. 3. 2. Experimentelle Abstrahlung des NV-Zentrums

Im Anschluss an die Berechnung soll nun experimentell die Abstrahlcharakteristik untersucht werden. Hierfür wird eine zusätzliche Back Focal Plane Linse in den Strahlengang eingebracht. Dabei werden die unregelmäßig abgestrahlten Emissionen in der Back Focal Plane gebündelt und mit Hilfe der zusätzlichen Linse (der Back Focal Plane Linse bzw. Bertrand-Linse) kollimiert, sodass diese Emission mit der sCMOS abgebildet werden kann. Da sehr wenig Strahlung

auf diese Weise zur Kamera gelangt, wird ein Bildstapel aus 100 Einzelbildern, die mit einer Belichtungszeit von jeweils 2 s aufgenommen worden sind, erzeugt. Aus diesem Bildstapel wird wiederum ein Bild generiert. Um Informationen über den Hintergrund zu erhalten, ist eine weitere Aufnahme aus 100 Bildern á 2 s Belichtungszeit etwa 3 μm neben der Fluoreszenz aufgenommen worden. Anhand dieser beiden Bilder kann der Hintergrund von der Fluoreszenz subtrahiert werden. Dies führt zu folgendem Ergebnis, siehe Abbildung 4-14.

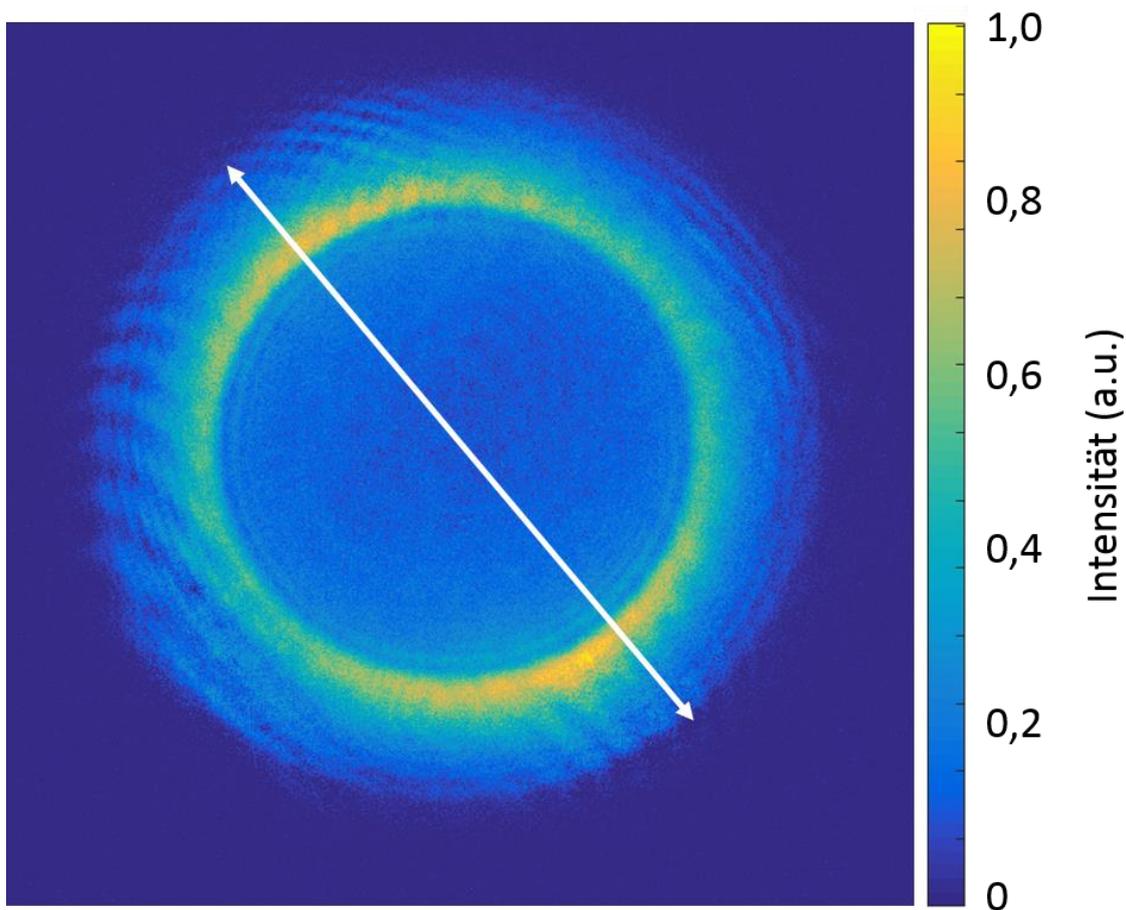


Abbildung 4-14: Aufnahme der Abstrahlcharakteristik eines NV-Zentrums durch das Back Focal Plane-Verfahren. Das kreisförmige Gebilde, dessen Ausmaße durch den doppelseitigen weißen Pfeil angedeutet werden, entspricht dem 2-fachen Öffnungswinkel des Mikroskop-objektivs. Die Intensität der Emission ist farbcodiert dargestellt. Entlang der weißen Linie sind Untersuchungen zum Intensitätsverlauf vorgenommen worden nach [81].

Die Abbildung 4-14 zeigt farbcodiert die relative Intensität der Fluoreszenz eines NV-Zentrums in der Back Focal Plane. Die Darstellung der Emission hat eine kreisförmige Erhöhung der Intensität (hellblau bis gelb, dies entspricht den relativen Intensitätswerten von etwa 0,2 bis 1)

auf einem Hintergrund (dunkelblau, Intensität 0). Dieses kreisförmige Gebilde entspricht vom Durchmesser dem 2-fachen des Öffnungswinkels des Mikroskopobjektivs, also $145,6^\circ$. Innerhalb des Bereichs der Intensitätserhöhung gibt es weitere Unterschiede in der Intensität, die über die Farbcodierung sichtbar werden. Besonders auffällig ist dabei der gelbliche Ring (Intensität etwa 0,8 bis 1). Dieser weist an sich gegenüberliegenden Seiten zwei Bereiche auf, die eine höhere Intensität von etwa 1 haben. Entlang des Kreises befinden sich zwischen den Bereichen höherer Intensität zwei Bereiche, die schwächer gelb eingefärbt sind (Intensität etwa 0,8), also eine schwächere Intensität aufweisen, im Vergleich zu den helleren Bereichen. Diese Charakteristik zeigt sich nicht nur speziell bei diesem einzelnen Einzelphotonenemitter, sondern auch bei anderen NV-Zentren, die in diesem Zusammenhang untersucht worden sind. Dabei zeigt sich aber auch, dass die Orientierung für jedes NV-Zentrum individuell ist. Daher kann daraus geschlossen werden, dass dies Aufschluss über die Dipolorientierung im NV-Zentrum geben kann. Im Fall von Abbildung 4-14 steht der Dipol nicht senkrecht auf dem Deckglas, sondern scheint eher senkrecht zu der eingezeichneten weißen Linie zu liegen. Dabei liegt der Dipol nicht parallel zum Deckglas, denn der untere helle Bereich erscheint etwas heller als der obere helle Bereich, was dafür spricht, dass der Dipol eine leichte Verkippung bezüglich der Deckglasebene aufweist.

Ein Intensitätsplot entlang der weißen Linie mit den doppelseitigen Pfeilenden gibt Aufschluss über die Intensitätsverteilung. Diese ist als grüner Kurvenverlauf in Abbildung 4-15 dargestellt.

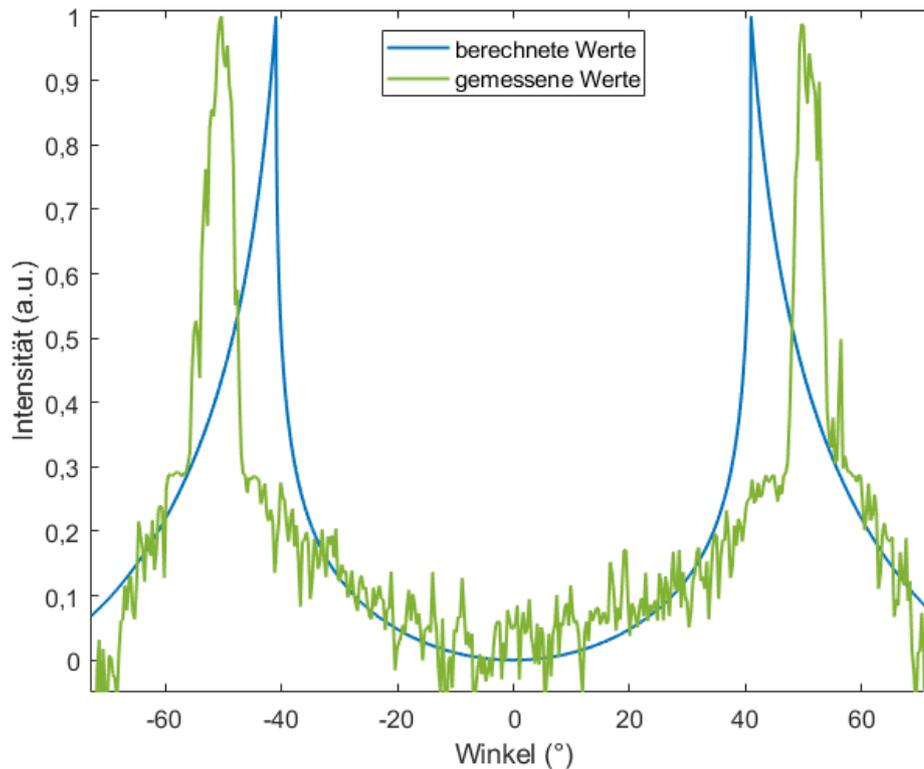


Abbildung 4-15: Vergleich der gemessenen Intensitätswerte (grüne Kurve) in Abhängigkeit vom Winkel mit den berechneten Werten (blaue Kurve). Die Werte der Messung und der Berechnung sind für den Bereich des doppelten Öffnungswinkels dargestellt nach [81].

Auch bei der Messung der Intensität zeigt sich eine deutliche Erhöhung. Diese liegt bei etwa 50° . Im Vergleich zu den berechneten Intensitäten sieht man eine Verschiebung des Intensitätsmaximums der Fluoreszenz um etwa 9° . Der steile Anstieg hin zum Intensitätsmaximum ist bei beiden Kurvenverläufen zu erkennen, allerdings ist der Abfall bei Entfernung vom Intensitätsmaximum in der Messung deutlich stärker ausgeprägt als in der Berechnung. Es fällt zudem auf, dass der Anstieg auch um etwa 9° versetzt ist. Dennoch kann ein Zusammenhang zwischen den berechneten und gemessenen Intensitätswerten gesehen werden.

Die Abbildung 4-14 hat bereits gezeigt, dass der Dipol nicht senkrecht auf dem Deckglas stehen kann, da sonst keine Dipolorientierung hinsichtlich des Azimutwinkels feststellbar wäre. Daher sind zudem Berechnungen für den parallel zur Grenzschicht orientierten Dipol durchgeführt worden (siehe Abbildung 8-2). Des Weiteren sind Simulationen angestellt worden, in denen sich der Dipol (senkrecht und horizontal zur Grenzfläche) in einem gewissen Abstand zur Grenzfläche befindet, die in Abbildung 8-3 und Abbildung 8-4 gezeigt sind. Das Intensitätsmaximum wird bei beiden Dipolorientierungen unabhängig vom Abstand zur Grenzfläche vom

kritischen Winkel geprägt und liegt demnach bei 41° . Die Verschiebung des Intensitätsmaximums in den Messungen ist demnach nicht durch die Dipollage erklärbar.

Bezüglich der winkelabhängigen Emissionsverteilung zeigt sich in den Berechnungen, dass bei dem horizontal zur Grenzfläche liegenden Dipol die Abstrahlungsintensität bis etwa 40° recht gleichbleibend verhält und dann deutlich stärker ansteigt als beim senkrechten Fall. Dies kann durch die Messungen nicht beobachtet werden. Der Anstieg in der Abstrahlungsintensität aus der Messung ähnelt bis zum kritischen Winkel eher dem Verlauf des senkrechten Dipols als dem des Horizontalen. Das bedeutet, dass der Dipol nicht horizontal zur Grenzfläche liegt. Daher muss auch an dieser Stelle davon ausgegangen werden, dass der Dipol sich in einem Winkel zwischen 0° und 90° gekippt zur Grenzfläche befindet ($0^\circ < \theta < 90^\circ$).

Bei der Betrachtung der Abstände des Dipols von der Grenzfläche zeigt sich, dass der Abfall der Intensität ab dem Intensitätsmaximum (Winkel größer dem kritischen Winkel) mit zunehmenden räumlichen Abstand stärker wird. Dieses Verhalten kann auch in den Messungen beobachtet werden. Es kann also davon ausgegangen werden, dass der Dipol einen gewissen Abstand zur Grenzfläche aufweist, was sich durch den umgebenden Nanodiamanten erklären lassen würde. Denn das NV-Zentrum befindet sich im Inneren des Nanodiamanten, der eine räumliche Ausdehnung von etwa 75 nm hat und es ist nicht davon auszugehen, dass sich das Zentrum an einer Grenzfläche befindet. Daher erscheint ein gewisser räumlicher Abstand als sinnvoll.

Von einer Abschätzung bezüglich des räumlichen Abstands zwischen Dipol und Grenzschicht wird an dieser Stelle abgesehen, da zuvor die Verschiebung des Intensitätsmaximums am kritischen Winkel untersucht werden muss und wie sich diese Verschiebung auf den Kurvenverlauf auswirkt.

5. Messunsicherheitsbetrachtung

Die Betrachtung der Messunsicherheiten spielt insbesondere in Hinblick auf die absolute Charakterisierung einer Stickstofffehlstellen-basierten Einzelphotonenquelle eine entscheidende Rolle. Die Bestimmung der Messunsicherheiten soll gemäß dem GUM („*Guide to the Expression of Uncertainty in Masurement*“) erfolgen [82].

Als Modellgleichung für die Messunsicherheitsbetrachtung des absoluten Photonенflusses pro Sekunde und pro Wellenlänge der absoluten Einzelphotonenquelle wird angenommen [81]:

$$N_{\text{ph},\lambda}(\lambda) = \frac{\lambda}{hc} \frac{U_{\text{out}} C_{\text{int}}}{t_{\text{int}}} \frac{1}{s_{\text{spec}}} \frac{S_{\text{NV}}}{S_{\text{NVTot}}} = \frac{\lambda}{hc} \frac{U_{\text{out}} C_{\text{int}}}{t_{\text{int}}} \frac{1}{s_{\text{spec}}} S_{\text{rel}}. \quad (56)$$

Die Gleichung ergibt sich aus dem Einsetzen der Gleichungen (43), (45), (48) und (49) in Gleichung (50). Anhand der Gleichung (56) ist bereits der große Einfluss des Detektors und des Spektrometers deutlich ersichtlich. Zu den Einflussgrößen des Detektors zählen die Messgrößen U_{out} , C_{int} , t_{int} und s_{spec} . Die Messgrößen S_{NV} und S_{NVTot} zählen zu den Einflussgrößen des Spektrometers. Zudem sind weitere Einflussgrößen bekannt, die sich indirekt auf die Messung auswirken und als „weitere Parameter“ zusammengefasst sind. Das Ishikawa-Diagramm [83] in Abbildung 5-1 zeigt eine Zusammenfassung der Einflussgrößen, welche im weiteren genauer beschrieben werden.

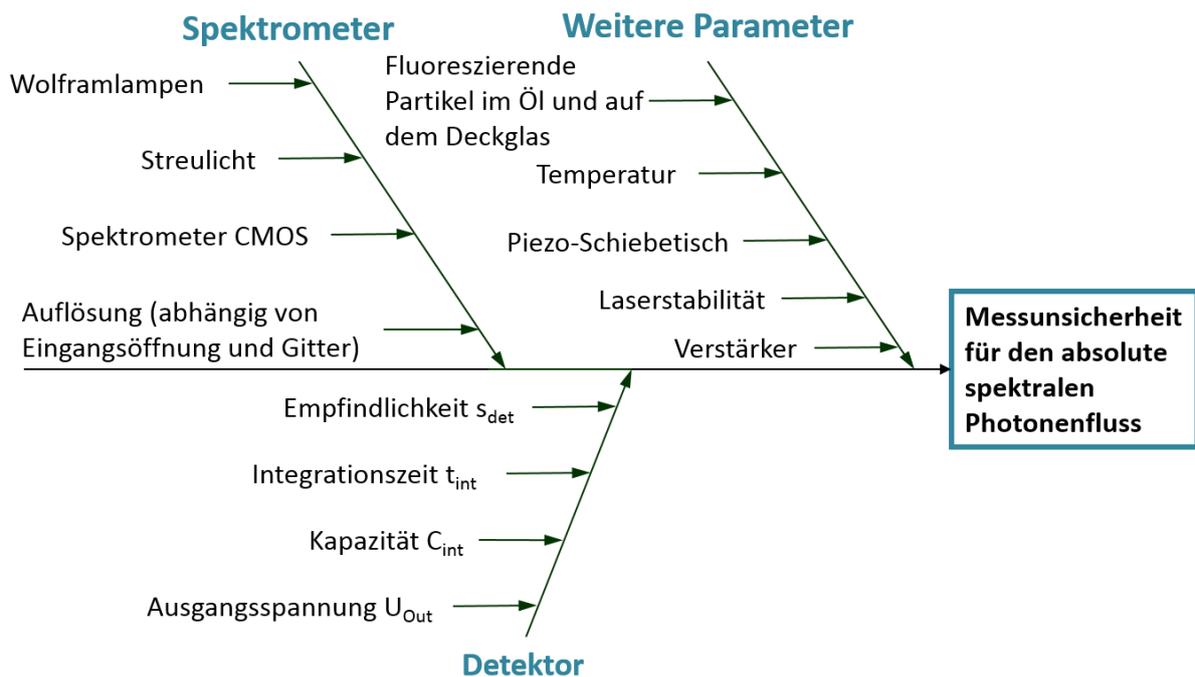


Abbildung 5-1: Ishikawa-Diagramm [83] zur Darstellung der Einflussgrößen für die Messunsicherheitsbestimmung für den absoluten spektralen Photonenfluss.

Aus den eingestellten Parametern heraus ist davon auszugehen, dass das Spektrometer den größten Einfluss auf die Messunsicherheit hat. Für die Kalibrierung des Spektrometers bzgl. der spektralen Bestrahlungsstärke wird ein Fehler von 1 % angenommen. Streulicht und Effekte zweiter Ordnung werden für diese Messunsicherheitsbetrachtung vernachlässigt, da für sie in der Messung kein signifikanter Einfluss festgestellt werden konnte. Die Stickstoff-gekühlte CMOS-Kamera des Spektrometers trägt einen weiteren Beitrag zur Messunsicherheit bei. Dieser Fehler ist in Kombination mit der Auflösung des Spektrometers untersucht worden. Das Auflösungsvermögen ist maßgeblich durch die Breite der Eingangsöffnung und das verwendete Gitter bestimmt. Da das Spektrum des NV-Zentrums relativ breit ist, kam für die Messung lediglich das Gitter 3 (150 Riefen pro Millimeter) in Frage, siehe Kapitel 3. 2. 4. . Bei weiterer Verwendung des Gitters 3, kann zukünftig der Eingangsspalt (1 mm) als einstellbare Größe variiert werden. Um das Auflösungsvermögen zu bestimmen, ist eine Messung mit einem Laser (Controller: Velocity Tunable Laser Controller TLB-6300-LN von New Focus; und Laserkopf: Velocity Tunable Diode Laser, Wellenlängenbereich von 765 nm bis 781 nm, Modell 6312 von New Focus) durchgeführt worden. Die gemessene spektrale Bandbreite der Laserstrahlung (eingestellt auf 769,1 nm), ermittelt mit Gitter 1 und mit einem Öffnungsspalt von 0,01 mm, betrug

etwa 0,25 nm (FWHM). Dieselbe Wellenlängeneinstellung wurde im nächsten Schritt für die Messung mit Gitter 3 und einem Eingangsspalt von 1 mm verwendet. Dabei wurde die spektrale Bandbreite der Laserstrahlung zu 1,05 nm (FWHM) bestimmt. Die Messung ist im Anhang in Abbildung 8-5 dargestellt. Die Verschiebung der Wellenlänge bei Gitter 3 muss an dieser Stelle nicht berücksichtigt werden, da die Korrektur der Wellenlänge für Gitter 3 bereits in der Korrekturrechnung in Folge der Spektrometerkalibrierung erfolgte. Da die Verbreiterung des Spektrums nicht korrigiert wurde, muss der Fehler dafür abgeschätzt werden. Hierzu wird eine Bandbreitenkorrektur k_b des im Spektrometer gemessenen Signals s durchgeführt nach [84]. Unter Annahme einer dreieckigen Spaltfunktion für eine Bandbreite b von 1,05 nm ergibt sich die Bandbreitenkorrektur zu [84]:

$$k_b = s - \frac{b^2}{12} s''(\lambda), \quad (57)$$

wobei $s''(\lambda) = d^2s/(d\lambda)^2$ die zweifache Ableitung des Signals nach der Wellenlänge ist. Normiert auf das Ausgangssignal ($\frac{k_b}{s}$) kann der Faktor der Änderung sowie die prozentuale Abweichung bestimmt werden. Da die Differentiation numerisch durchgeführt wurde, um Verfälschungen durch ein Fitting zu vermeiden, ist die prozentuale Abweichung mit einer gewissen Streuung behaftet. Die Standardabweichung der prozentualen Abweichung liegt bei 4,26 %. Dies wird als Messunsicherheit für die Verbreiterung des Spektrums betrachtet.

Somit ergibt sich eine Gesamt-Messunsicherheit US_{rel} für die relative spektrale Leistungsverteilung S_{rel} aus der Korrektur des Spektrums k_{sB} und der Standardabweichung der Bandbreitenkorrektur k_{bp} nach

$$US_{\text{rel}} = \sqrt{k_{\text{sB}}^2 + k_{\text{bp}}^2} \quad (58)$$

von 4,38 %.

Der zweite wichtige Bereich für die Messunsicherheitsbetrachtung ist der Detektor. Die Messunsicherheiten für U_{out} , C_{int} und t_{int} sind bereits bestimmt worden und wurden teilweise aus Referenz [74] entnommen. Die Messunsicherheit der Integrationskapazität liegt bei 0,014 % und die der Integrationszeit bei 0,001 %. Für die Ausgangsspannung wurde eine Unsicherheit von 0,5 % angenommen. Der letzte Wert ist höher als in Referenz [74] veranschlagt worden. Diese konservative Annahme wurde gemacht, da in der Referenz lediglich eine Wellenlänge untersucht wurde, während für die spektrale Analyse des NV-Zentrums ein spektraler

Bereich von 150 nm betrachtet wird. Die Messunsicherheit für die spektrale Empfindlichkeit des Detektors s_{spec} sowie für die Photonenenergie e_{spec} wurden mit Hilfe von Monte Carlo Simulationen und Gleichung (44) bzw. Gleichung (47) auf je 0,1 % bestimmt.

Weitere Parameter spielen für die Messunsicherheit eine vernachlässigbare Rolle. Dennoch sollen die Parameter genannt werden und es soll diskutiert werden, warum diese für die Betrachtung nicht berücksichtigt werden.

Ein solcher Parameter ist die Fluoreszenz von Partikeln, die sich im Öl und im Deckglas befinden können. Diese Partikel können bei einer Echtzeitbetrachtung unter Verwendung der Weitfeld-Optik und der sCMOS beobachtet werden. Dabei stellt man jedoch auch fest, dass diese Partikel recht schnell ausbleichen und dann nicht mehr zu beobachten sind. Das bedeutet wiederum, dass nur bei erstmaliger Betrachtung eines bestimmten Bereichs diese Partikel eine Rolle spielen. Da der Bereich um das, für die absolute Quelle verwendete, NV-Zentrum im Nanodiamanten mehrfach gescannt wurde, sowie weitere Untersuchungen durchgeführt wurden, bei denen das Zentrum mit Laserlicht bestrahlt bzw. angeregt wurde, ist davon auszugehen, dass eventuelle Fluoreszenzen in diesem Bereich ausgebleichen sind und somit keinen Einfluss auf die Messung haben.

Ein weiterer zu vernachlässigender Parameter ist die Temperatur. Zwar reagiert ist das NV-Zentrum sensitiv auf Temperaturunterschiede. Denn die nichtstrahlende Rate nimmt bei höheren Temperaturen zu [85]. Allerdings hat dies keinen Einfluss bei Temperaturveränderungen in der Größenordnung von etwa 1 K. Die Raumtemperatur von etwa 22 °C hat einen vernachlässigbaren Einfluss auf die verwendeten Geräte. Der LOFD ist Peltier-gekühlt und die CCD-Kamera am Spektrometer wird mit flüssigem Stickstoff konstant auf Temperatur gehalten. Alle weiteren Geräte arbeiten bei Raumtemperatur. Der Messplatz ist bei dieser Temperatur aufgebaut und justiert worden. Daher hat auch in diesem Punkt die Temperatur keinen merklichen Einfluss.

Auch die Positionierung mit dem Piezotisch ist eine zu vernachlässigende Größe. In der Ansteuerung verfährt der Tisch bis auf 10 nm genau. Bei einem dauerhaften Verweilen auf einer Position ist daher davon auszugehen, dass der Fehler sich noch einmal reduziert. Der Strahldurchmesser des fokussierten Laserstrahls wird auf etwa 350 nm geschätzt. Zudem ist die Positionierung in 0,1 µm-Schritten vorgenommen worden. Daher ist davon auszugehen, dass eine Änderung der Position um etwa 10 nm keine Auswirkung auf die Anregung und damit verbunden auf die Einzelphotonenemission hat.

Weiterhin ist auch die Stabilität des Lasers zu berücksichtigen, da die Stabilität einen indirekten Einfluss auf die Emission der Einzelphotonenquelle hat. Kommt es zu Schwankungen in der Intensität, kann dies zu Schwankungen in der Einzelphotonenemission führen. Laut Herstellerangaben beträgt die Laserstabilität 0,4 % RMS [70], im schlechtesten Fall können somit Schwankungen um 0,4 % in der Emission auftreten. Schwankungen in der Emission würden sich auf die Zählrate auswirken. Die gemessenen Schwankungen im Ausgangssignal bzw. in der Zählrate betragen allerdings nur etwa 0,15 %. Diese Schwankungen wirken sich nicht signifikant auf die relative spektrale Leistungsverteilung S_{rel} aus. Die vorgenommene Rundung des Fehlers für S_{rel} auf 4,38 % beinhaltet die bereits die vergleichsweise geringen Schwankungen.

Die wesentlichen Komponenten, die zur Messunsicherheit des absoluten spektralen Photonенfluss beitragen, sowie deren Anteil an der berechneten Gesamtunsicherheit sind in Tabelle 2 aufgelistet.

Tabelle 2: Tabellarische Übersicht der Messunsicherheitsbetrachtung für den absoluten spektralen Photonенfluss.

Messgröße	Messwert	Standardunsicherheit	Relative Standardunsicherheit (%)	Verteilung	Sensitivitätsquotient	Anteil an Gesamtmessunsicherheit	Relative Anteil an Gesamtmessunsicherheit (%)
U_{out}	0,019 V	$9,27 \cdot 10^{-5}$ V	0,5	Standard	$5,06 \cdot 10^4$ (msV) ⁻¹	$4,70$ (ms) ⁻¹	9,63
C_{int}	$1,0046 \cdot 10^{-12}$ F	$1,36 \cdot 10^{-16}$ F	0,0136	Standard	$9,35 \cdot 10^{14}$ (msF) ⁻¹	$0,13$ (ms) ⁻¹	0,26
S_{rel}	$4,83 \cdot 10^{-3}$ m ⁻¹	$2,12 \cdot 10^{-4}$ m ⁻¹	4,38	Standard	$1,94 \cdot 10^5$ s ⁻¹	$41,14$ (ms) ⁻¹	84,32
t_{int}	1 s	$1,00 \cdot 10^{-5}$ s	$1,00 \cdot 10^{-3}$	Standard	$-939,4$ (ms ²) ⁻¹	$-9,39 \cdot 10^{-3}$ (ms) ⁻¹	0,02
S_{spec}	0,338 A/W	$1,01 \cdot 10^{-3}$ A/W	0,3	Standard	$-2,78 \cdot 10^3$ W·(msA) ⁻¹	$-2,82$ (ms) ⁻¹	5,78

Aus der Berechnung für die Messunsicherheit ergibt sich eine relative Standard-Messunsicherheit von 4,42 %. Die erweiterte relative Messunsicherheit ($k=2$) beträgt 8,84 %. Der absolute spektrale Photonенfluss inklusive Messunsicherheit ist in Abbildung 5-2 dargestellt.

Der größte Messunsicherheitsbeitrag ergibt sich aus der spektralen Leistungsverteilung S_{rel} mit rund 84 %.

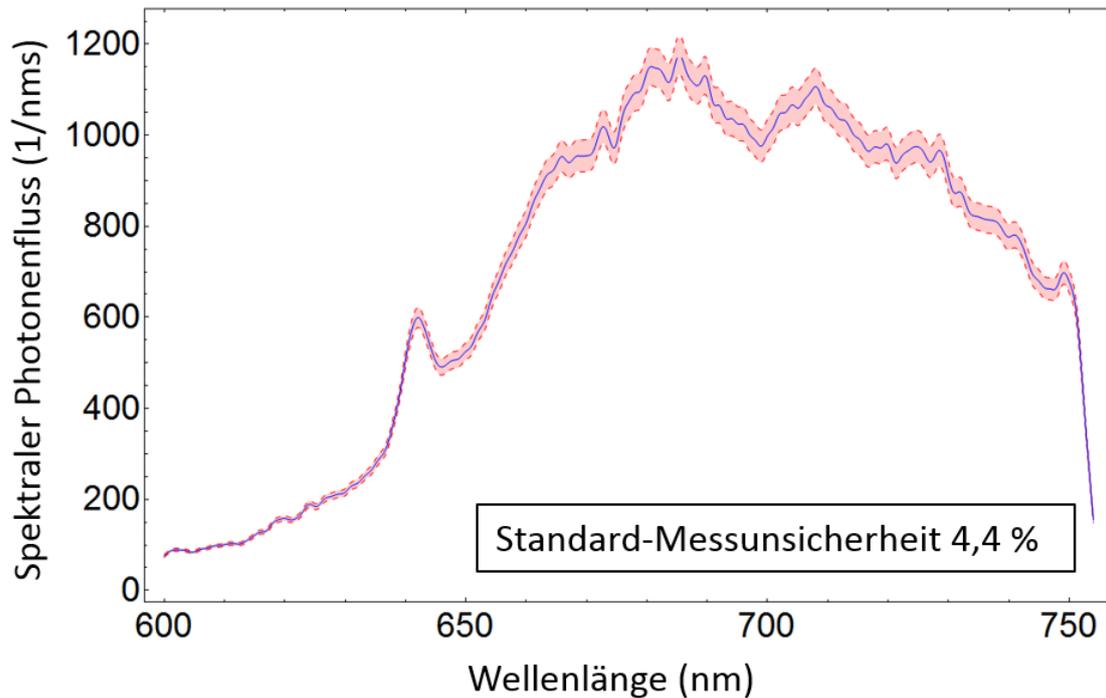


Abbildung 5-2: Spektraler Photonenfluss in Abhängigkeit von der Wellenlänge (blaue Kurve) und dazugehörige Standard-Messunsicherheit (rotes Unsicherheitsband) nach [81].

Eine Messunsicherheitsbetrachtung für die winkelabhängige Emission der NV-Zentren wird zu diesem Zeitpunkt für nicht sinnvoll erachtet. Zuvor müssen weitere Berechnungen für die verschiedenen Positionen und Winkel bezüglich der Dipolausrichtung zum Deckglas vorgenommen werden. Außerdem sind zuvor weitere Untersuchungen hinsichtlich möglicher Verzerrungen vorzunehmen.

6. Diskussion

Die Diskussion der Ergebnisse soll sich in zwei Teilabschnitte aufteilen, die sich auf die Schwerpunkte der Arbeit konzentrieren.

Für die Charakterisierung einer absoluten Einzelphotonenquelle ist ein konfokaler Messaufbau inklusive eines Einzelphotonenemitters aus Nanodiamant-basierten Stickstofffehlstellen realisiert worden. Die Messunsicherheiten für die ermittelten absoluten Größen des Photonenflusses pro Nanometer und pro Sekunde sowie des Strahlungsflusses pro Nanometer sind ermittelt worden. Dabei wurde die Quelle als Ganzes betrachtet, was sowohl den konfokalen Aufbau mit Einkopplung in die Glasfaser als auch die Diamantprobe beinhaltet. Für die Messung mit dem LOFD ist zudem die Fokussieroptik auf die Detektoroberfläche Bestandteil der Einzelphotonenquelle. Die Verluste an den diversen Grenzflächen wurden dabei als Teil der Quelle angesehen. Es wurde also lediglich der Output der Quelle betrachtet und somit mussten die Verluste nicht weiter detailliert berücksichtigt werden. Dennoch sind deutlich höhere Photonenraten von einem Einzelphotonenemitter mit einer Lebensdauer von ca. 20 ns zu erwarten. Grob abgeschätzt sollten, unter der Voraussetzung einer Quanteneffizienz von 100 % und verlustfreier Transmission von der Quelle bis zum Detektor, Photonenraten bis zu $50 \cdot 10^6$ Emissionen pro Sekunde möglich sein. Je nach Literatur liegt die Quanteneffizienz von NV-Zentren in Nanodiamanten zwischen 10 % und annähernd 100 % [46], [86], die zu erwartenden Photonenraten wären dann zwischen $5 \cdot 10^6$ Photonen/s und $50 \cdot 10^6$ Photonen/s.

Das bedeutet im Umkehrschluss, dass die auftretenden Verluste reduziert werden können, um somit eine erhöhte Photonenrate am Detektor bzw. an der Anwendung zu erreichen. Ein wesentlicher Punkt liegt dabei in der Transmission der optischen Komponenten. Dies beinhaltet sowohl Verluste an Spiegeln, Filtern und Strahlteilern als auch Verluste durch die Einkopplung in die Glasfaser. In Referenz [87] wurde die Transmission für den Messaufbau für die Detektion mit dem SPAD auf 23,8 % bestimmt. Zudem wurde für die absolute Charakterisierung mit dem LOFD gemessen. Da für die Nutzung des LOFDs ein Freistrahleinkopplung nötig war, mussten zwei weitere Mikroskopobjektive verwendet werden, was sich wiederum in einer Verringerung der Transmission auswirkt. Unter Betrachtung des Hintergrunds wird angenommen, dass das Fluoreszenzsignal etwa 3-fach höher sein müsste. Ausgehend von den 200 000 Photonen pro Sekunde (LOFD-Messung), entspricht das Signal vor den 2 Mikroskopobjektiven für die Fokussierung auf den Detektor etwa 600 000 Photonen pro Sekunde (am Ausgang der optischen

Faser). Unter Berücksichtigung der Transmission des restlichen Aufbaus von ca. 23,8 % emittiert das NV-Zentrum im Nanodiamanten etwa 2,5 Millionen Photonen pro Sekunde. Die Berechnung der Photonenzahl unter Berücksichtigung der Transmission ist nachfolgend noch einmal aufgeschlüsselt.

$$\begin{aligned}
 N_{\text{mögliche Photonen}} &= N_{\text{Photon gemessn}} / (T_{\text{Aufbau}} \cdot T_{\text{Mikroskopobjektive}}) \\
 &= 200\,000 \frac{1}{\text{s}} / (0,238 \cdot 0,333) = 2,5 \cdot 10^6 \frac{1}{\text{s}}.
 \end{aligned}
 \tag{59}$$

Je nach Quanteneffizienz der Emitter muss der Verbleib der restlichen Photonen geklärt werden. Dennoch kann durch Beschichtungen der Oberflächen an den optischen Komponenten (Kurzpass-, Langpass- und Notch-Filter, dichroitischer Spiegel), sowie durch eine bessere Einkopplungsoptik für die Glasfaser und für die Fokussierung auf den LOFD eine höhere Photonen ausbeute realisiert werden.

In den Scan-Messungen hat sich gezeigt, dass die NV-Zentren eine ovale Form annehmen. Sie erscheinen entlang der y-Achse verzerrt. Dies kann auf zwei Ursachen zurückzuführen sein. Zum einen kann diese Verzerrung durch die Messung mit dem Messprogramm hervorgerufen worden sein. Das Programm scannt entlang y-Achse. Es werden also für jeden x-Wert nacheinander alle y-Werte aufgenommen bevor der nächste x-Wert angesteuert wird. Dies kann zu einer Verwischung in der Detektion führen. Ein solches Verwischen kann programmier-technisch über die Einführung von Wartezeiten bzw. die Verlängerung von Wartezeiten zwischen zwei Messpunkten verbessert werden. Zum anderen kann dies auf eine ungenaue Justage zurückzuführen sein. Denn der komplexe konfokale Aufbau benötigt sehr genaue Justage und bereits kleinste Winkelverschiebungen können sich drastisch auswirken. Eine absolut perfekte Justage ist nicht zu erreichen. Bereits eine minimale Kippung des Laserstrahls kann sich in einer elliptischen Anregung äußern und wiederum zu einer elliptischen Emissionsdetektion führen. Die Unsicherheitsbetrachtung der absoluten Einzelphotonenquelle hat deutlich gezeigt, dass die größte Unsicherheit durch die Messung des Spektrums hervorgerufen wird. Anhand der Kalibrierung des Spektrometers konnte die spektrale Verschiebung mit bekannten Spektrallinien korrigiert werden und die spektrale Bestrahlungsstärke wurde mit Hilfe einer auf den Schwarzkörperstrahler zurückgeführten Wolframlampe berichtigt. Der große Fehler in der Messunsicherheitsbetrachtung stammt aus dem Auflösungsvermögen des Spektrometers, welches geprägt ist durch das verwendete Gitter und die Eingangsöffnung. Da der zu messende spektrale Bereich

recht breit ist, macht die Verwendung eines feineren Gitters wenig Sinn, wenn mit einer Messung der gesamte spektrale Bereich erfasst werden soll. Es wäre zwar möglich mit einem feineren Gitter schmalere spektrale Bereiche zu messen und im Nachhinein die spektralen Bereiche zu verknüpfen. Allerdings müssten hierbei Korrekturen an den Überschneidungspunkten vorgenommen werden und es wäre erst nach Bearbeitung des gesamten Spektrums möglich, einen Gesamteindruck von spektralen Bereich des NV-Emitters zu erhalten.

Es ist zudem möglich, den Eingangsspalt zu verkleinern. Dies würde zu längeren Integrationszeiten führen, dennoch sollte für eine zukünftige Verbesserung der spektralen Messungen dies angewendet werden.

Der zweite wesentliche Beitrag zur Messunsicherheit stammt vom Detektor. Die Fehler des Detektors sind intrinsisch und zudem aufgrund des breiten Spektrums des NV-Zentrums teilweise größer angenommen worden als sie in Referenz [74] angegeben waren. Da es auf dem Markt allerdings keine vergleichbaren Produkte gibt und es sich bei diesem Modell um einen Prototyp handelt, kann eine Optimierung des Messunsicherheitsbudgets nur über eine genaue Betrachtung der Unsicherheitsgröße für U_{Out} vorgenommen werden. Zudem ist der LOFD sehr empfindlich bezüglich der Einkopplung des Fluoreszenzsignals. Bereits kleinste Berührungen oder Veränderungen der Lage der Glasfaser, führen zu deutlichen Änderungen im Messsignal. Dies muss auch für weitere Messungen berücksichtigt werden.

Die Messung der Korrelationsfunktion 2. Ordnung kann durch eine gezielte Hintergrundsubtrahierung verbessert werden. Die Referenzen [7] und [35] geben dafür mögliche Ansätze vor. Allerdings ist zu erwähnen, dass der Hintergrund zum Großteil aus der Probe selbst stammt und somit ein Teil der absoluten Einzelphotonenquelle darstellt. Außerdem kann auch die Dunkelzähl-Rate berücksichtigt werden, um die Ergebnisse weiter zu optimieren [7]. Allerdings stand in dieser Arbeit die Prüfung der Einzelphotonenemissionsgüte der gesamten Quelle im Vordergrund und es konnte eindeutig gezeigt werden, dass trotz Hintergrundemission eine Einzelphotonenquelle vorlag. Für zukünftige Charakterisierungen, insbesondere für solche, die den Fokus auf der Charakterisierung des NV-Zentrums haben, wäre die Hintergrundsubtrahierung und Berücksichtigung der Dunkelzählrate eine Verbesserung für die Auswertung der Messung.

Weiterhin soll auch die Angular Emission in der Diskussion berücksichtigt werden. Die durchgeführten Berechnungen sind sowohl für einen direkt auf der Grenzschicht senkrecht stehenden

Dipol als auch für einen horizontal zur Grenzfläche befindlichen Dipol für verschiedene räumliche Abstände zur Grenzfläche durchgeführt worden. Die Simulation des senkrechten zur Grenzfläche stehenden Dipols ohne räumlichen Abstand ist mit der Messung direkt verglichen worden. Im Vergleich zeigen die Messungen einen Dipol der sich mit einer gewissen Verkipfung auf der Grenzfläche befindet. Das bedeutet, dass der Dipol weder parallel zur Grenzfläche liegt, noch dass der Dipol auf der Grenzfläche steht. Daher müssen weitere Untersuchungen und Berechnungen bezüglich diverser Kippwinkeln zwischen stehend und liegend durchgeführt werden. Zudem wird aufgrund des Intensitätsabfalls für Winkel größer dem kritischen Winkel davon ausgegangen, dass sich der Dipol mit einem gewissen räumlichen Abstand zur Grenzfläche befindet. Ein solcher Abstand lässt sich durch die Einbettung des NV-Zentrums in einem Nanodiamanten erklären. Allerdings ist die genaue Lage des Zentrums im Diamanten nicht bekannt und individuell für jedes NV-Zentrum im Nanodiamanten. Daher kann der Abstand zur Grenzfläche aus dem Vergleich mit der Simulation abgeschätzt werden. Ein solcher Vergleich ist nicht durchgeführt worden, da zuvor geklärt werden muss, warum es zu einer Verschiebung des Intensitätsmaximums am kritischen Winkel kommt und wie diese Verschiebung sich auf den Kurvenverlauf auswirken.

Das Ergebnis aus dem Vergleich der Berechnung und der Messung ist vielversprechend für weitere Untersuchungen, da sich zeigt, dass Messung und Berechnung nicht konträre Resultate erzielen und dies als guter Ausgangspunkt für weitere Untersuchungen genutzt werden kann. Alle Simulationen zeigten, dass der Großteil der Fluoreszenz in das Deckglas abgestrahlt wird und es ist für weitere Messungen zu erwarten, dass der Großteil der Fluoreszenz mit einem Mikroskopobjektiv, welches eine ähnliche numerische Apertur besitzt wie das verwendete, eingesammelt werden kann.

Weiterhin ist nicht untersucht worden, ob es zu Verzerrungen am Rand des Objektivs oder in der Back Focal Plane Linse kommt, die sich negativ auf das gemessene Bild in der sCMOS auswirken und somit den Betrachtungsbereich fälschlicher Weise schmälern oder verbreitern. Dies könnte zukünftig mit speziell beschichteten Deckgläsern durchgeführt werden.

Zudem war es schwierig, den Öffnungswinkel in dem gemessenen sCMOS-Bild festzulegen, da die Ränder des Bildes nicht eindeutig ersichtlich waren. Dies ist anhand von Abbildung 4-14 nachvollziehbar. Denn am Rand der Fluoreszenz treten Interferenzen deutlicher hervor, die genaue Bestimmung der Grenzfläche zwischen Fluoreszenz und Hintergrund schwierig machen.

Ein weiterer Aspekt bezüglich der Angular Emission betrifft die Abstrahlung in Luft. Diese ist zwar berechnet worden, allerdings im Rahmen dieser Arbeit nicht gemessen worden. Somit konnte auch nicht festgestellt werden, ob die Emission in die obere Halbkugel wie berechnet emittiert wurde und ob das Verhältnis zwischen den beiden Sphären mit den Rechnungen übereinstimmt.

7. Zusammenfassung und Ausblick

Es wurde eine absolute Einzelphotonenquelle basierend auf Stickstofffehlstellen in Nanodiamanten für die Radiometrie realisiert. Die Quelle wurde hinsichtlich ihres absoluten spektralen Photonенflusses pro Sekunde und pro Nanometer und ihres absoluten spektralen Strahlungsflusses pro Nanometer charakterisiert.

Die absolute Charakterisierung wurde mit einer ununterbrochenen Rückführungskette zu den Primärnormalen -Schwarzkörperstrahler und Kryoradiometer- durchgeführt. Bei dem verwendeten Einzelphotonenemitter handelt es sich um eine Einzelphotonenquelle, deren Einzelphotonenemission Hilfe des Hanbury-Brown und Twiss Interferometers für verschiedene Anregungsleistungen nachgewiesen wurde.

Die charakterisierte Einzelphotonenquelle emittiert je nach Anregungsleistung eine Ausgangsleistung im Bereich zwischen 55 fW und 75 fW. Für Anregungen größer als 1 mW geht die Quelle in eine Art Sättigung über. Ab dieser Anregungsleistung steigt die Anzahl der emittierten Photonen des NV-Zentrums nur noch geringfügig an. Zusätzlich wird ein linearer Anstieg der Hintergrundstrahlung beobachtet.

Die effektive spektrale Empfindlichkeit s_{spec} des verwendeten Low Optical Flux Detektors und die durchschnittliche Photonenenergie e_{spec} der Einzelphotonenquelle wurden für eine Anregungsleistung von 274 μW bestimmt zu:

$$s_{\text{spec}} = (0,33798 \pm 0,00034) \frac{\text{A}}{\text{W}}, \quad (60)$$

und

$$e_{\text{spec}} = (2,8855 \pm 0,0029) \cdot 10^{-19} \text{J}. \quad (61)$$

Um eine für die Radiometrie verwendbare Einzelphotonenquelle zu realisieren, sind die Messunsicherheit betrachtet worden. Die nach GUM ermittelte Standard-Messunsicherheit beträgt 4,42 % für den absoluten Photonенfluss.

Damit geht die Arbeit einen entscheidenden Schritt in Richtung eines neuen, Photonenzahl-basierten Standards für die Radiometrie und Photometrie. Unter anderem sieht die *mise-en-pratique* für die Candela ausdrücklich eine Photonenzahl-basierte Realisierung der SI-Basiseinheit Candela vor [88]. Außerdem können prinzipiell mit einer solchen Quelle zukünftig

Einzelphotonendetektoren kalibriert werden. Allerdings wird für eine solche Aufgabe eine schmalbandige Einzelphotonenquelle benötigt, die aber prinzipiell durch geeignete Filtrierung realisiert werden kann. Somit ist eine solche Quelle als Strahlungsquelle für die Radiometrie geeignet.

Zukünftig kann dennoch über weitere Realisierungen von absoluten Einzelphotonenquellen nachgedacht werden, die auf anderen Fehlstellen beruhen. Zum Beispiel zeigen Siliciumfehlstellen im Nanodiamanten eine schmale Null-Phononen-Linie. In der Literatur hat die Null-Phononen-Linie eine Emissionsbandbreite von ca. 0,7 nm bis 5 nm bei etwa 730 nm bis 750 nm [53].

Es könnten aber auch andere Substrate für die NV-Zentren verwendet werden, um die Phonon-Seitenbänder zu unterdrücken. So haben die Messungen von Zhao et al. (2012) [40] gezeigt, dass die Bänder bei kryogenen Temperaturen in Kombination mit einem Substrat aus SiO_2/Si stark unterdrückt werden können.

Weiterhin wurde die Abstrahlcharakteristik einer Einzelphotonenquelle basierend auf einer Stickstofffehlstelle im Nanodiamanten untersucht, die auf einer dielektrischen Schicht (Deckglas) aufgebracht ist. Hierfür wurden Berechnungen sowohl hinsichtlich eines senkrecht auf der Grenzschicht stehenden Dipols als auch eines parallel zur Grenzschicht liegenden Dipols für verschiedene räumliche Abstände zwischen Dipol und Grenzschicht vorgenommen. Des Weiteren sind Messungen der Dipolabstrahlung in der Back Focal Plane durchgeführt worden. Messung und Berechnung stimmen bis auf wenige Grad Abweichung im Kurvenverlauf überein und sind eine gute Grundlage für zukünftige Untersuchungen. Allerdings hat sich bei der Messung der Dipolabstrahlung gezeigt, dass der Dipol nicht senkrecht auf der Grenzfläche steht (90° Winkel zwischen Deckglas und Dipol), sondern gekippt ist ($0^\circ < \theta < 90^\circ$). Daher sollten zukünftig weitere Berechnungen für diverse Kippwinkel durchgeführt werden. Außerdem sollten Messungen an weiteren Stickstofffehlstellen-basierten Einzelphotonenemittern durchgeführt werden, um herauszufinden, ob eine bevorzugte Lage des Dipols zum Deckglas vorherrscht. Weiterhin könnte auch noch untersucht werden, ob es bei mehreren NV-Zentren in einem Nanodiamanten zu einer gemeinsamen Ausrichtung entlang einer bestimmten Dipollage kommt oder ob es zu einer Überlagerung verschiedener Dipolabstrahlungen kommt.

Weitere Untersuchungen könnten sich auch mit der Abstrahlung des Dipols in das Medium Luft auseinandersetzen. Hierfür müsste ein sog. "doppelkonfokales Mikroskop" realisiert werden, mit welchem sowohl Messungen in der unteren Hemisphäre als auch in der oberen Hemisphäre möglich wären um Rückschlüsse auf die gesamte Abstrahlcharakteristik des NV-Zentrums zu gewinnen.

8. Anhang

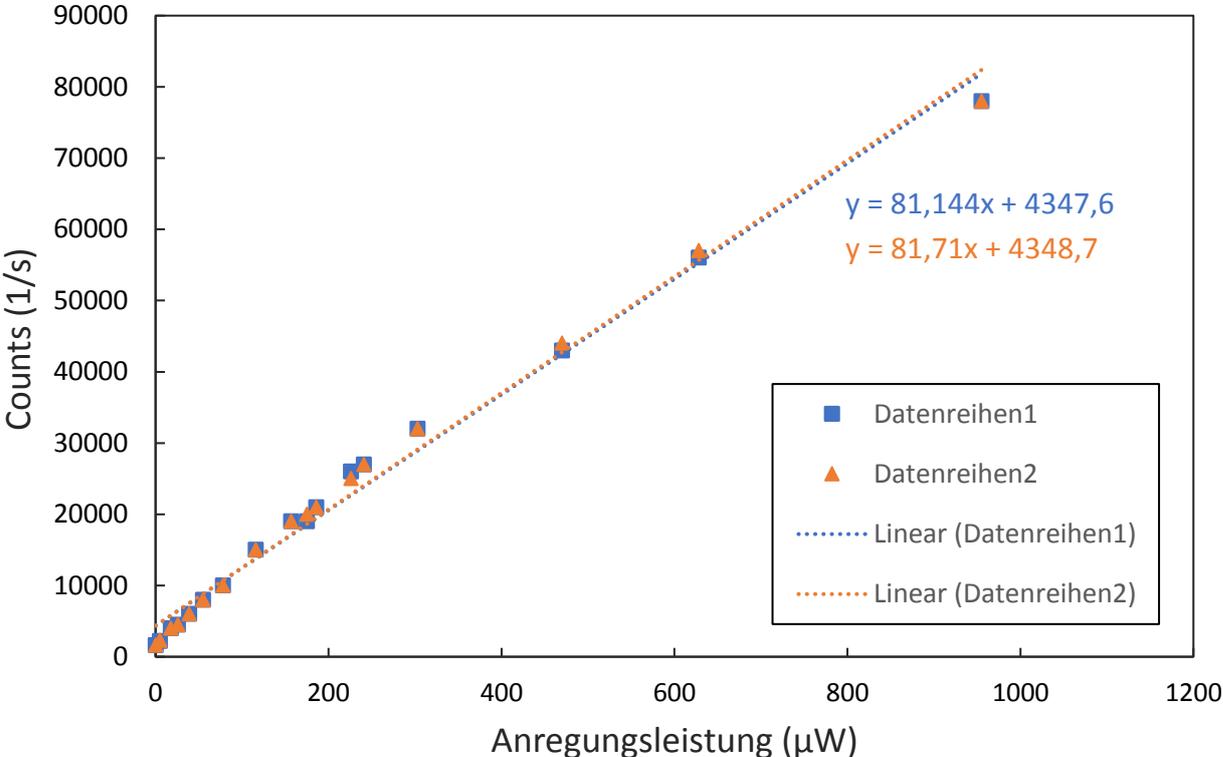


Abbildung 8-1: Linearitätsmessung des Hintergrunds gemessen mit dem SPAD an zwei verschiedenen Punkten auf der Probe BRNV07.

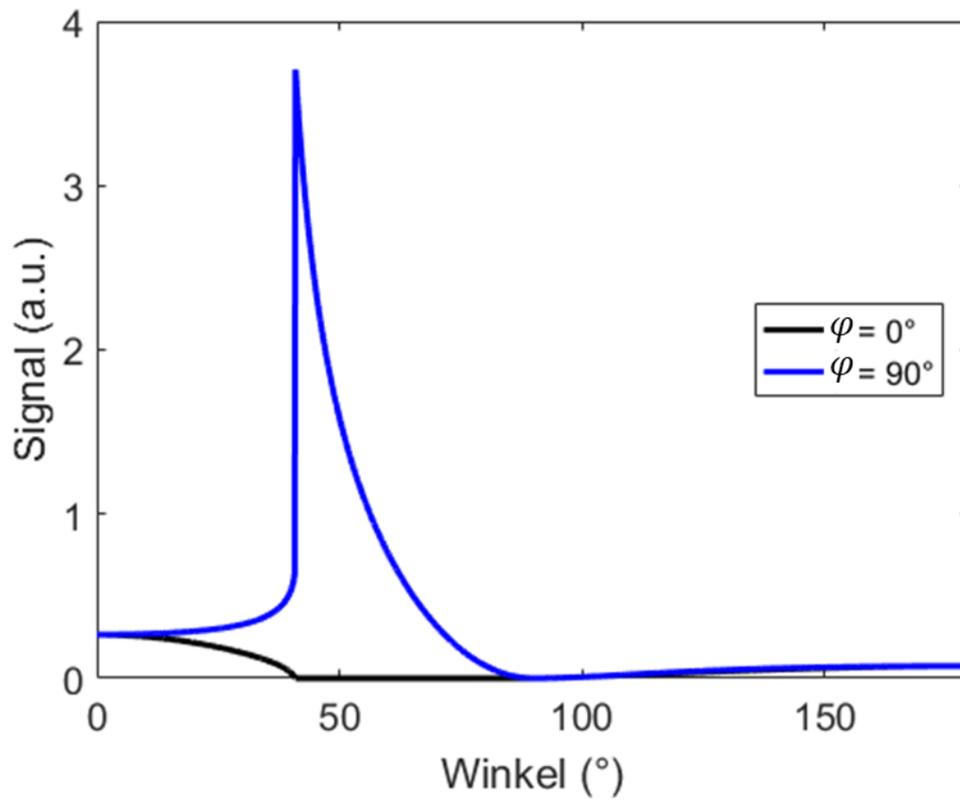


Abbildung 8-2: Horizontal zur Grenzfläche befindlicher Dipol ohne räumlichen Abstand. Die blaue Kurve zeigt die Abstrahlcharakteristik für einen Azimutwinkel von 90° und die schwarze Kurve entspricht einem Azimutwinkel von 0° .

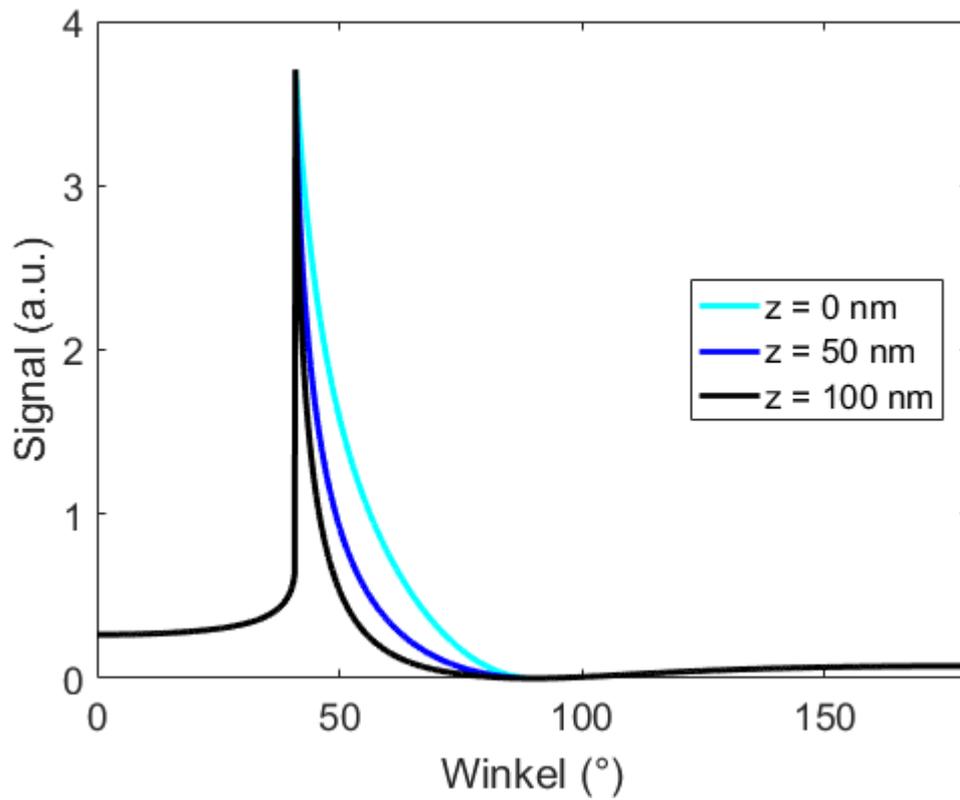


Abbildung 8-3: Dipol, der sich horizontal zur Grenzfläche befindet für drei verschiedene Abstände (0 nm, 50 nm und 100 nm) zur Grenzfläche. Die Graphen unterscheiden sich lediglich in dem Winkelbereich zwischen 41° und 90°, für kleinere und größere Winkel sind die Abstrahlungsverteilungen gleich.

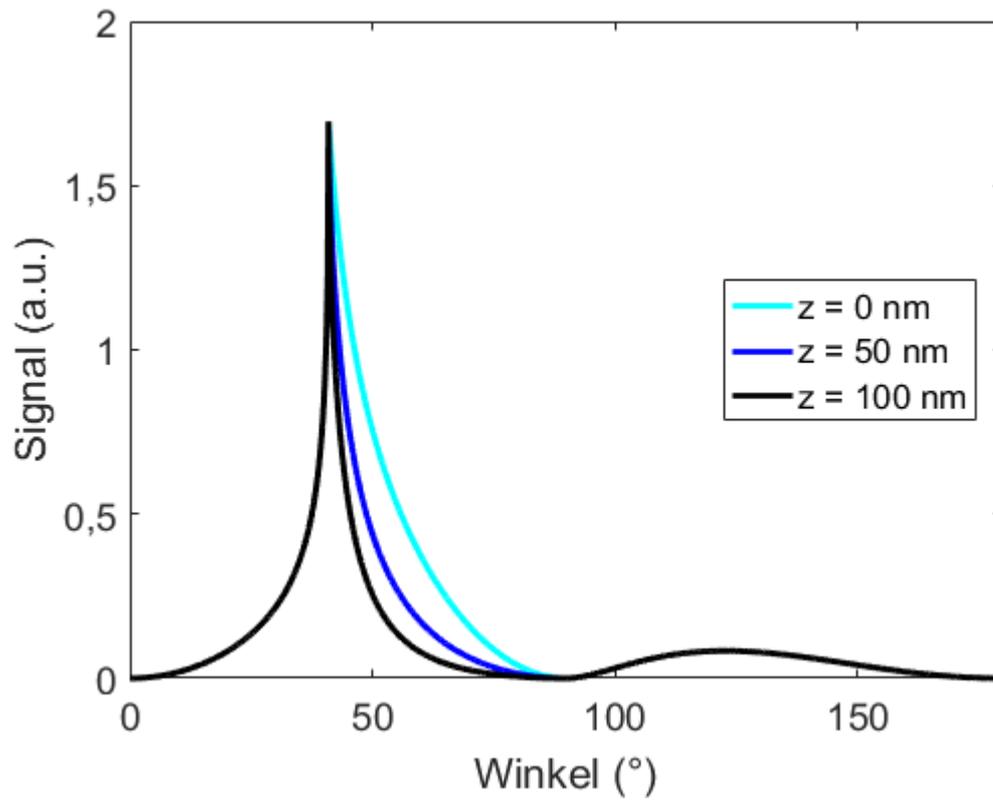


Abbildung 8-4: Dipol, der sich senkrecht zur Grenzfläche befindet für drei verschiedene Abstände (0 nm, 50 nm und 100 nm) zur Grenzfläche. Die Graphen unterscheiden sich lediglich in dem Winkelbereich zwischen 41° und 90° , für kleinere und größere Winkel sind die Abstrahlungsverteilungen gleich.

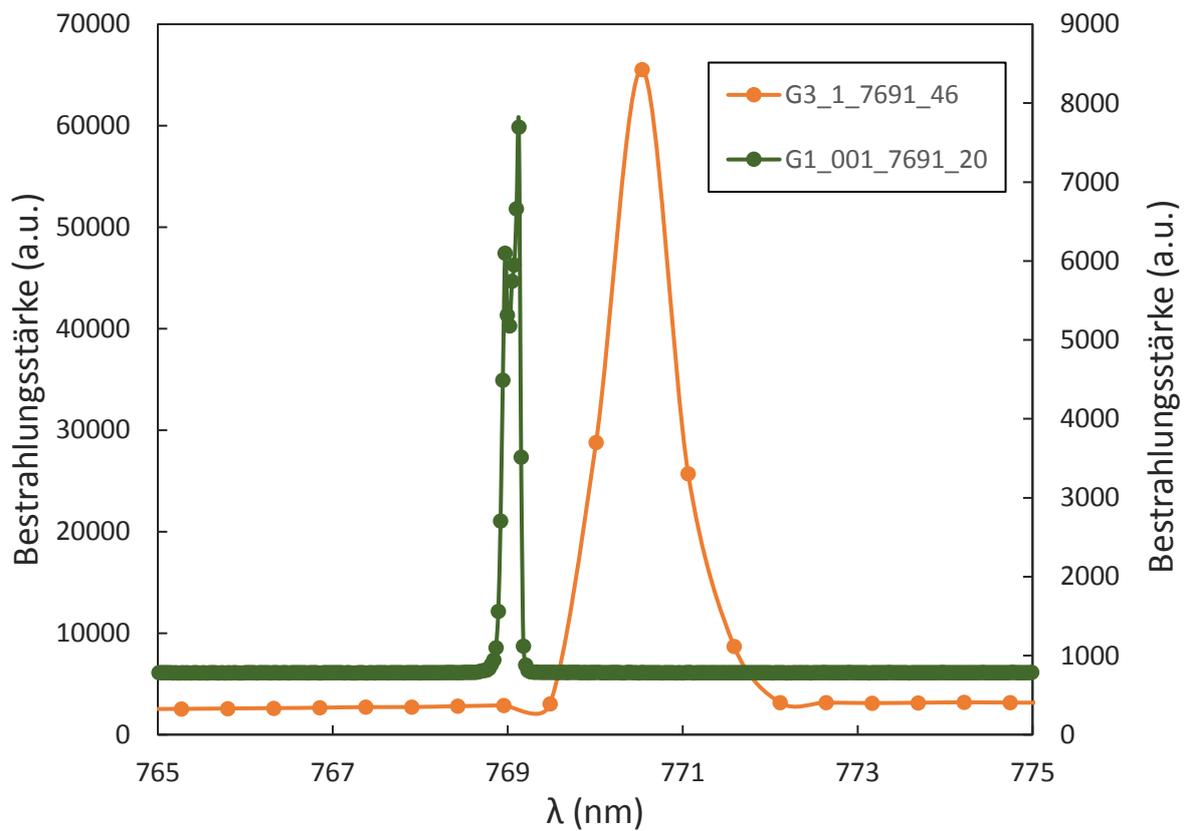


Abbildung 8-5: Spektrale Verbreiterung hervorgerufen durch Auflösung im Spektrometer. Die grüne Kurve zeigt das Spektrum eines Lasers aufgenommen mit Gitter 1 und einem Eingangsspalt von 0,01 mm. Die orange Kurve zeigt den selben spektralen Verlauf aufgenommen mit Gitter 3 bei einem Eingangsspalt von 1 mm. Die spektrale Verschiebung soll an dieser Stelle ignoriert werden, da diese in der Korrektur der Wellenlänge berücksichtigt wird.

Literaturverzeichnis

- [1] C. J. Chunnillal *et al.*, “Metrology of single-photon sources and detectors: a review,” *Opt. Eng.*, vol. 53, no. 8, p. 81910, 2014.
- [2] W. Schmunk, M. Rodenberger, S. Peters, H. Hofer, and S. Kück, “Radiometric calibration of single photon detectors by a single photon source based on NV-centers in diamond,” *J. Mod. Opt.*, vol. 58, no. 14, pp. 1252–1259, 2011.
- [3] M. D. Eisaman, J. Fan, J. Migdall, and S. V Polyakov, “Invited Review Article: Single-photon sources and detectors,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 82, no. 71101, 2011.
- [4] W. Schmunk *et al.*, “Photon number statistics of NV centre emission,” *Metrologia*, vol. 49, no. APRIL, pp. S156–S160, 2012.
- [5] J. C. Zwinkels, E. Ikonen, N. P. Fox, G. Ulm, and M. L. Rastello, “Photometry, radiometry and ‘the candela’: evolution in the classical and quantum world,” *Metrologia*, vol. 47, no. 5, pp. R15–R32, 2010.
- [6] J. Y. Cheung *et al.*, “The quantum candela: A re-definition of the standard units for optical radiation,” *J. Mod. Opt.*, vol. 54, no. 2–3, pp. 373–396, 2007.
- [7] S. Scheel, “Single-photon sources—an introduction,” *J. Mod. Opt.*, vol. 56, no. 2–3, pp. 141–160, 2009.
- [8] G. S. Buller and R. J. Collins, “Single-Photon Generation and Detection,” *Meas. Sci. Technol.*, vol. 21, no. 1, p. 28, 2010.
- [9] A. Beveratos, R. Brouri, J. P. Poizat, and P. Grangier, “Bunching and antibunching from single NV color centers in diamond,” *ArXiv*, p. 7, 2000.
- [10] F. Jelezko *et al.*, “Spectroscopy of single N-V centers in diamond,” *Single Mol.*, vol. 2, no. 4, pp. 255–260, 2001.
- [11] S. Schreiner, “Freiraumoptische Quantenkryptographie,” Ludwig-Maximilians-Universität München, 2007.
- [12] C. Zinoni, “Optical Characterisation of Single Quantum Dots Emitting At 1300 Nm,” École Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2007.
- [13] I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, C.-H. Su, A. D. Greentree, and S. Praver, “Diamond-based single-photon emitters,” *Reports Prog. Phys.*, vol. 74, no. 7, p. 28, 2011.
- [14] C. Wang, “Festkörperbasierte Einzelphotonenquelle,” Ludwig-Maximilians-Universität München, 2003.
- [15] M. Fox, *Quantum Optics*. Oxford University Press, 2006.
- [16] P. Dolan, X. Li, J. Storteboom, and M. Gu, “Complete determination of the orientation of NV centers with radially polarized beams,” *Opt. Express*, vol. 22, no. 4, pp. 4379–4387, 2014.
- [17] E. O. Göbel and U. Siegner, “Quantum Metrology: Foundation of Units and Measurements,” First Edit., Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2015, pp. 191–205.
- [18] X.-L. Chu *et al.*, “Experimental realization of an optical antenna designed for collecting 99% of photons from a quantum emitter,” *Optica*, vol. 1, no. 4, pp. 203–208, 2014.
- [19] K. Lee, X. Chen, H. Eghlidi, A. Renn, S. Gotzinger, and V. Sandoghdar, “A planar dielectric antenna for directional single-photon emission and near-unity collection efficiency,” *2011 Conf. Lasers Electro-Optics Eur. 12th Eur. Quantum Electron. Conf. CLEO Eur. 2011*, vol. 5, no. March, 2011.
- [20] M. Böhmler *et al.*, “Enhancing and redirecting carbon nanotube photoluminescence by an optical antenna,” *Opt. Express*, vol. 18, no. 16, pp. 16443–51, 2010.
- [21] M. A. Lieb, J. M. Zavislan, and L. Novotny, “Single-molecule orientations determined by direct emission pattern imaging,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 21, no. 6, pp. 1210–1215, 2004.
- [22] M. Leifgen *et al.*, “Evaluation of nitrogen- and silicon-vacancy defect centres as single photon sources in quantum key distribution,” *New J. Phys.*, vol. 16, 2014.
- [23] H. Paul, *Photonen - Eine Einführung in die Quantenoptik*, 2. Auflage. Leipzig: Teubner Studienbücher, 1999.
- [24] S. Pezzagna, D. Rogalla, D. Wildanger, J. Meijer, and A. Zaitsev, “Creation and nature of optical centres in diamond for single-photon emission-overview and critical remarks,” *New J. Phys.*, vol. 13, 2011.
- [25] E. Neu *et al.*, “Single photon emission from silicon-vacancy colour centres in chemical vapour deposition nano-diamonds on iridium,” *New J. Phys.*, vol. 13, pp. 1–21, 2011.
- [26] S. Mayer, “N/V-Zentren als Einzel-Photonen-Quelle,” Ludwig-Maximilians-Universität München, Schriftliche Hausarbeit für die erste Staatsprüfung, 2000.
- [27] C. Santori, D. Fattal, and Y. Yamamoto, *Single-photon Devices and Application*. 2010.

- [28] L. M. Sanzenbacher, “Thesis: Raman Spectroscopic Studies of Single Crystal Diamond,” pp. 1–41, 2011.
- [29] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, and H. Weinfurter, “Stable solid-state source of single photons,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 85, no. 2, pp. 290–293, 2000.
- [30] F. Jelezko and J. Wrachtrup, “Single defect centres in diamond: A review,” *Phys. Status Solidi Appl. Mater. Sci.*, vol. 203, no. 13, pp. 3207–3225, 2006.
- [31] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borcyskowski, “Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers,” *Science (80-.)*, vol. 276, no. 5321, pp. 2012–2014, 1997.
- [32] S. Kumar *et al.*, “Excitation of surface plasmon polariton modes with multiple nitrogen vacancy centers in single nanodiamonds,” *J. Opt.*, vol. 18, no. 2, p. 24002, 2016.
- [33] A. Lenef and S. C. Rand, “Electronic structure of the N-V center in diamond: Theory,” *Phys. Rev. B*, vol. 53, no. 20, pp. 13441–13455, 1996.
- [34] J.-J. Greffet, J.-P. Hugonin, M. Besbes, N. D. Lai, F. Treussart, and J.-F. Roch, “Diamond particles as nanoantennas for nitrogen-vacancy color centers,” *Phys. Opt.*, 2011.
- [35] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, and P. Grangier, “Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond,” *Opt. Lett.*, vol. 25, no. 17, p. 1294, 2000.
- [36] J. Stortebom, P. Dolan, S. Castelletto, X. Li, and M. Gu, “Lifetime investigation of single nitrogen vacancy centres in nanodiamonds,” *Opt. Express*, vol. 23, no. 9, pp. 11327–11333, 2015.
- [37] A. Mohtashami and A. Femius Koenderink, “Suitability of nanodiamond nitrogen-vacancy centers for spontaneous emission control experiments,” *New J. Phys.*, vol. 15, 2013.
- [38] F. A. Inam *et al.*, “Modification of spontaneous emission from nanodiamond colour centres on a structured surface,” *New J. Phys.*, vol. 13, 2011.
- [39] H. Bernien, L. Childress, L. Robledo, M. Markham, D. Twitchen, and R. Hanson, “Two-photon quantum interference from separate nitrogen vacancy centers in diamond,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 4, pp. 1–5, 2012.
- [40] H.-Q. Zhao, M. Fujiwara, and S. Takeuchi, “Suppression of fluorescence phonon sideband from nitrogen vacancy centers in diamond nanocrystals by substrate effect,” *Opt. Express*, vol. 20, no. 14, p. 15628, 2012.
- [41] A. M. Zaitsev, *Optical Properties of Diamond: A Data Handbook*, 1st ed. Springer-Verlag, 2001.
- [42] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier, “Nonclassical radiation from diamond nanocrystals,” *Phys. Rev. A*, vol. 64, no. 6, 2001.
- [43] T. Numai, *Fundamentals of Semiconductor Lasers*, 2nd ed. Springer Tokyo, 2015.
- [44] C. K. Duan and M. F. Reid, “Dependence of the spontaneous emission rates of emitters on the refractive index of the surrounding media,” *J. Alloys Compd.*, pp. 1–9, 2005.
- [45] R. S. Meltzer, S. P. Feofilov, B. Tissue, and H. B. Yuan, “Dependence of fluorescence lifetimes of $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$ nanoparticles on the surrounding medium,” *Phys. Rev. B*, vol. 60, no. 20, pp. 12–15, 1999.
- [46] M. Berthel, O. Mollet, G. Dantelle, T. Gacoin, S. Huant, and A. Drezet, “Photophysics of single nitrogen-vacancy centers in diamond nanocrystals,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 91, no. 3, pp. 1–13, 2015.
- [47] L. Rondin *et al.*, “Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 82, no. 11, pp. 1–5, 2010.
- [48] C. Nebel, “Charge Control of Single NV Centers in Diamond; NV-Zentren in Diamant: Kontrolle des Ladungszustands,” in *Jahresbericht 2016/2017*, Fraunhofer-Institut für Angewandte Festkörperphysik, Ed. 2017, pp. 54–57.
- [49] E. Hecht, *Optik*, 3. Auflage. Oldenbourg München Wien, 2001.
- [50] Jan Lich, “Festkörperbasierte Einzelphotonenquelle in Diamant,” Ludwig-Maximilian-Universität München, Diplomarbeit, 2008.
- [51] M. A. López, “Einzelphotonenquellen für radiometrische Anwendungen,” *Vortrag PTB Arbeitsplanung*, 2015.
- [52] M. Bass, *Handbook of Optics. Volume II Design, Fabrication, and Testing; Sources and Detectors; Radiometry and Photometry*. 2010.
- [53] S. Prawer and I. Aharonovich, *Quantum Information Processing with Diamond*. Woodhead Publishing, 2014.
- [54] S. Peters, H. Hofer, W. Schmunk, S. Kück, R. M. Klein, and I. Müller, “Charakterisierung von Einzelphotonendetektoren bei $1,55 \mu\text{m}$,” *DGaO Proc. 2013*, 2013.
- [55] J. B. Pawley, *Handbook of biological confocal microscopy*, 2nd ed. New York [u.a.]: Plenum Press, 1995.

- [56] K. Y. Han *et al.*, “Dark state photophysics of nitrogen-vacancy centres in diamond,” *New J. Phys.*, vol. 14, 2012.
- [57] G. S. Kino and T. R. Corle, “Confocal Scanning Optical Microscopy,” *Phys. Today*, vol. 42, no. 9, pp. 55–62, 1989.
- [58] M. Marvin, “Microscopy Appartatus,” US Patent 3013467, 1957.
- [59] R. Alléaume, F. Treussart, J. M. Courty, and J. F. Roch, “Photon statistics characterization of a single-photon source,” *New J. Phys.*, vol. 6, no. 4, pp. 1–24, 2004.
- [60] S. Wilhelm, B. Gröbler, M. Gulch, and H. Heinz, “Die Konfokale Laser Scanning Mikroskopie (CLSM),” *Carl Zeiss Mikroskopsysteme*, p. 37.
- [61] R. H. Webb, “Confocal optical microscopy,” *Reports Prog. Phys.*, vol. 59, no. 3, pp. 427–471, 1996.
- [62] Duke University, “Confocals.” [Online]. Available: <http://microscopy.duke.edu/learn/introtomicroscopy/confocals.html> (10.07.2017).
- [63] S. Inoué and R. Oldenbourg, “Microscopes,” in *Handbook of Optics Volume II*, 2nd ed., M. Bass, E. W. Van Stryland, D. R. Williams, and W. L. Wolfe, Eds. 1995.
- [64] D. Zhang *et al.*, “Back focal plane imaging of directional emission from dye molecules coupled to one-dimensional photonic crystals,” *Nanotechnology*, vol. 25, no. 14, 2014.
- [65] W. Lukosz and R. E. Kunz, “Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane dielectric interface. II. Radiation patterns of perpendicular oriented dipoles,” *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 67, no. 12, pp. 1615–1619, 1977.
- [66] W. Lukosz, “Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane dielectric interface. III. Radiation patterns of dipoles with arbitrary orientation,” *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 69, no. 11, pp. 1495–1503, 1979.
- [67] B. Rodiek *et al.*, “Experimental realization of an absolute single-photon source based on a single nitrogen vacancy center in a nanodiamond,” *Optica*, vol. 4, no. 1, p. 71, 2017.
- [68] Microdiamant AG, “Liquid Diamond GAF.” [Online]. Available: http://www.microdiamant.com/fileadmin/downloads/Doku_D/Datasheets_D/Liquid_Diamond_D.pdf (05.02.2018).
- [69] K. Rudolph (Nikon Sales), “Transmissionsdaten MRD01905 CFI PA Lambda 100x Öl.” 2015.
- [70] Laser Quantum, “Ventus 532.” [Online]. Available: <http://www.laserquantum.com/products/detail.cfm?id=25&language=de#specification> (13.07.2017).
- [71] J. Zhang, M. A. Itzler, H. Zbinden, and J. W. Pan, “Advances in InGaAs/InP single-photon detector systems for quantum communication,” *Light Sci. Appl.*, vol. 4, no. January, pp. 1–13, 2015.
- [72] R. H. Hadfield, “Single-photon detectors for optical quantum information applications,” *Nat. Photonics*, vol. 3, no. 12, pp. 696–705, 2009.
- [73] Excelitas Technologies, “Single Photon Counting Module,” 2014. [Online]. Available: http://www.excelitas.com/Downloads/DTS_SPCM-AQRH.pdf (05.02.2018).
- [74] G. Porrovecchio, M. Šmid, M. López, H. Hofer, B. Rodiek, and S. Kück, “Comparison at the sub-100 fW optical power level of calibrating a single-photon detector using a high-sensitive, low-noise silicon photodiode and the double attenuator technique,” *Metrologia*, vol. 53, pp. 1115–1122, 2016.
- [75] Horiba Jobin-Yvon, “iHR Brochure,” 2013. [Online]. Available: http://www.horiba.com/fileadmin/uploads/Scientific/Documents/Mono/iHR_Brochure-2013.pdf (21.07.2017).
- [76] LOT-Oriel, “Light sources for calibration: Pen-Ray line sources for wavelength calibration.”
- [77] Arbeitsgruppe 4.11 (Physikalisch-Technische Bundesanstalt), *Spektrale Kalibrierdaten der Wolframlampe SL113_Sek2015*. 2015.
- [78] B. Rodiek, M. López, H. Hofer, X. Chu, S. Götzinger, and S. Kück, “Characterisation of nitrogen-vacancy based single-photon sources,” *DGaO Proc.*, 2016.
- [79] Horst Stöcker, *Taschenbuch der Physik*. Verlag Harri Deutsch, 2007.
- [80] J. T.-H. Choy, “Nanophotonic structures for coupling to quantum emitters in the visible,” Harvard University, 2013.
- [81] B. Rodiek, M. López, H. Hofer, and S. Kück, “The absolutely characterized nitrogen vacancy center-based single-photon source – measurement uncertainty of photon flux and angular emission properties,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 972, 2018.
- [82] J. C. F. G. I. Metrology, *Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement*. 2008.
- [83] K. Ishikawa, *What is total quality control? : the Japanese way*. Englewood Cliffs, N.J.: Prentice-Hall; Inc., 1985.

- [84] M. G. Cox, P. M. Harris, and P. D. Kenward, “Spectral characteristic modelling,” Teddington, United Kingdom, 2003.
- [85] T. Plakhotnik and D. Gruber, “Luminescence of nitrogen-vacancy centers in nanodiamonds at temperatures between 300 and 700 K: perspectives on nanothermometry,” *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 12, no. 33, pp. 9751–9756, 2010.
- [86] A. Mohtashami, a F. Koenderink, and A. Femius Koenderink, “Suitability of nanodiamond NV centers for spontaneous emission control experiments,” *New J. Phys.*, vol. 15, no. 4, p. 27, 2013.
- [87] M. López, B. Rodiek, and Stefan Kück, “Coupling efficiency from the emitter to a detector,” JRP – EXL02 SIQUTE, D1.2.9, 2015.
- [88] J. Zwinkels *et al.*, “Mise en pratique for the definition of the candela and associated derived units for photometric and radiometric quantities in the International System of Units (SI),” *Metrologia*, vol. 53, no. 3, p. 2016, 2016.



Herausgeber:

Physikalisch-Technische Bundesanstalt
ISNI: 0000 0001 2186 1887

Presse und Öffentlichkeitsarbeit

Bundesallee 100
38116 Braunschweig

Telefon: (05 31) 592-93 21
Telefax: (05 31) 592-92 92
www.ptb.de

Vertrieb:

Fachverlag NW in der
Carl Schünemann Verlag GmbH

Zweite Schlachtpforte 7
28195 Bremen

Telefon: (04 21) 369 03-0
Telefax: (04 21) 369 03-63
www.schuenemann-verlag.de