

Kopplung von Stickstoff-Fehlstellenzentren an photonische Kristallresonatoren in Diamant

Dissertation

zur Erlangung des Grades
des Doktors der Naturwissenschaften
der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät
der Universität des Saarlandes

von

Thomas Jung

Saarbrücken

2019

Tag des Kolloquiums: 01.07.2019

Dekan: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Guido Kickelbick

Berichterstatter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Christoph Becher
Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Rainer Birringer

Vorsitz: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Jürgen Eschner

Akad. Mitarbeiter: Dr.-Ing. Christoph Pauly

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Stickstoff-Fehlstellenzentren (NV-Zentren) an photonische Kristallresonatoren in einkristallinem Diamant gekoppelt. Hierzu wurden die eingesetzten Resonatoren in Simulationen zunächst umfassend charakterisiert. Im Anschluss daran wurden wenige hundert Nanometer dicke Diamantmembranen in zwei Probensystemen hergestellt und durch eine Analysemethodik derart charakterisiert, dass die Resonatoren darin reproduzierbar per FIB-Strukturierung hergestellt werden konnten. Der eingesetzte FIB-Prozess wurde optimiert, sodass Fabrikationsabweichungen minimiert und Gütefaktoren der Resonatormoden von bis zu $Q = 8250$ bei Modenvolumina um $1 (\lambda/n)^3$ erzielt werden konnten. Ferner wurde die Abstrahlcharakteristik von Licht aus den Nanostrukturen in Simulationen umfassend untersucht und auch ein hinsichtlich der Sammeleffizienz optimiertes Probensystem hergestellt. Durch zielgenaue Implantation konnten NV-Zentren in die Resonatorflächen eingebracht und im Anschluss daran die Mode eines Resonators gezielt auf die Nullphononenlinie der inkorporierten NV-Zentren abgestimmt werden. Die Lebensdauer des angeregten Zustands konnte dadurch von 9,0 ns auf 8,0 ns verkürzt und ein Kopplungsfaktor der spontanen Emission von $\beta = 18,7\%$ erzielt werden. Als Anwendung konnte gezeigt werden, dass das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Auslese des NV-Elektronenspins durch das Abstimmen der Mode nahezu verdreifacht werden kann.

Abstract

In this thesis nitrogen-vacancy (NV) centres were coupled to photonic crystal cavities in single-crystal diamond. To this end, the used cavities were first thoroughly characterized in simulations. Subsequently, diamond membranes with a thickness of only a few hundred nanometers were fabricated in two different sample systems and characterized by a methodology that allows the cavities to be fabricated reproducibly therein by FIB-milling. The deployed FIB-milling process was optimized such that fabrication tolerances were minimized and cavity modes with Q-factors up to $Q = 8250$ at modal volumes around $1 (\lambda/n)^3$ could be achieved. Furthermore, the directional characteristic of light emission out of the nanostructures was examined in further simulations and a sample system optimized with regard to the collection efficiency was produced. NV-centres were incorporated into the photonic crystal cavities by means of a high resolution implantation technique and subsequently a cavity mode was tuned deterministically into resonance to the zero-phonon line of the incorporated NV-centres. Thus, the spontaneous emission lifetime was reduced from 9.0 ns to 8.0 ns and a spontaneous emission coupling factor of $\beta = 18.7\%$ was reached. As an application it was shown that the signal-to-noise ratio of the optical spin readout is almost tripled in resonance to the NV zero-phonon line.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Defekzentren in Diamant	11
2.1	Diamant	11
2.1.1	Kristallstruktur und allgemeine Eigenschaften	11
2.1.2	Optische Eigenschaften	13
2.1.3	Natürlicher Diamant	14
2.1.4	Synthetischer Diamant	14
2.2	Farbzentren	16
2.3	Das Stickstoff-Fehlstellenzentrum	20
2.3.1	Elektronische Struktur	23
2.3.2	Spinpolarisation	26
2.3.3	Spinauslese und Spinmanipulation	30
2.3.4	Kohärente Oszillationen durch Rabi-Sequenzen	34
2.3.5	Linienverbreiterung der NV-ZPL	40
3	Emitter-Resonator-Kopplung	43
3.1	Jaynes-Cummings-Modell	43
3.2	Jaynes-Cummings-Modell mit Dissipation	47
3.3	Kopplung im Purcell-Regime	51
3.4	Kopplung an breitbandige Emitter	54
4	Zweidimensionale photonische Kristalle	61
4.1	Wellengleichung für photonische Kristalle	61
4.1.1	Elektromagnetismus als Eigenwertproblem	62
4.1.2	Charakterisierung der Moden durch Ausnutzen von Symmetrien	67
4.2	Photonische Bandstrukturen	72
4.2.1	Theorie und Simulationsmethodik	72
4.2.2	Bandstruktur des hexagonalen photonischen Kristallgitters	75
4.2.3	Photonischer Kristall mit endlicher Höhe	78
4.3	Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallen	80
4.3.1	Punktdefekte in photonischen Kristallen	81
4.3.2	Simulationsmethodik	85
4.3.3	Moden des unoptimierten M7-Resonators	89
4.3.4	Optimierung eines M3-Resonators	91

4.3.5	Der optimierte M0-Resonator	98
5	Experimenteller Aufbau	99
5.1	Optischer Messaufbau	99
5.2	Mikrowellenaufbau	105
5.3	Realisierung von Pulssequenzen	106
6	Nanofabrikation photonischer Strukturen	109
6.1	Herstellung dünner freistehender Diamantmembranen	109
6.1.1	Herstellung von Diamantmembranen auf einem Siliziumsubstrat	112
6.1.2	Herstellung von Diamantmembranen in einem Volldiamantsystem	114
6.2	Charakterisierung der Diamantmembranen	116
6.2.1	Transmissionsspektroskopie mit Weißlicht	117
6.2.2	Laser-Abrasterungs-Mikroskopie und Weißlichtabbildungen	117
6.2.3	Messungen an Querschnitten in Diamant	119
6.2.4	Quantitative energie-dispersive Röntgenspektroskopie	120
6.3	Herstellung von Resonatoren in dünnen Membranen	123
6.3.1	FIB-Strukturierung	124
6.3.2	Metallschutzschicht und überhöhtes Galliumspattern	125
6.3.3	Nachbehandlung der Proben	127
6.3.4	Analyse der hergestellten Resonatoren	127
6.4	Zusammenfassung und Ausblick	130
7	Abstrahlung von Licht aus photonischen Strukturen	135
7.1	Simulationsmethodik	136
7.1.1	Berechnung von Fernfeldern	138
7.1.2	Abstrahlung von Licht aus einer Diamantmembran	140
7.2	Abstrahlung von Licht aus Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen	143
7.2.1	M7-Resonator	144
7.2.2	M3-Resonator	152
7.2.3	M0-Resonator	155
7.3	Optimierung der Abstrahlung von Licht aus photonischen Strukturen	156
7.3.1	Optimierung der Abstrahlung durch einen Goldspiegel	159
7.3.2	Herstellung eines optimierten Probensystems mit einem Goldspiegel	167
7.4	Zusammenfassung und Ausblick	172
8	Kopplung von NV-Zentren an eine Resonatormode	175
8.1	Implantation von NV-Zentren in Resonatoren	175
8.1.1	Nanoimplantation durch eine AFM-Spitze	178
8.1.2	Aktivierung und Nachweis implantierter NV-Zentren	181

8.2	Deterministische Abstimmung einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren	187
8.2.1	Abstimmung durch Oxidation und Gasanlagerung	188
8.2.2	Vergleich mit einem Ratengleichungsmodell	195
8.3	Zusammenfassung und Ausblick	199
9	Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis bei der Spinauslese von NV-Zentren	203
9.1	Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese	204
9.1.1	Methodik zur SNR-Erhöhung	205
9.1.2	Methodik zur zuverlässigen Kontrastbestimmung	208
9.2	Erhöhung des SNR durch Abstimmen einer Resonatormode auf die NV-Nullphononenlinie	215
9.2.1	Kontrast eines an eine Resonatormode gekoppelten NV-Ensembles	216
9.2.2	Vergleich mit einem Ratengleichungsmodell	219
9.2.3	Implikationen für das Signal-Rausch-Verhältnis	224
9.3	Zusammenfassung und Ausblick	226
10	Zusammenfassung	229

1 Einleitung

Die Welt befindet sich im Wandel. Genauso wie der Übergang von einer Agrargesellschaft zu einer Industriegesellschaft unser Leben modifizierte, bringt auch der schrittweise Einstieg in das Informationszeitalter entscheidende Veränderungen mit sich. Die digitale Informationsverarbeitung gewinnt vermehrt an Bedeutung, dies lässt sich nicht zuletzt an der Hightech-Strategie 2025 der Bundesregierung mit Zukunftsprojekten wie Wirtschaft und Arbeit 4.0 erkennen. Im Zusammenhang mit der viel diskutierten Digitalisierung ist auch vermehrt die Rede von quantenbasierten Systemen zur Informationsverarbeitung, die im Rahmenprogramm Quantentechnologien in die Hightech-Strategie mit eingebunden sind. Derartige Systeme sind klassischen digitalen Systemen überlegen und könnten diese in Zukunft ablösen. Das vielversprechende Potenzial der Quanteninformationsverarbeitung (*quantum information processing*, QIP) lässt sich nicht zuletzt an dem Engagement von Unternehmen wie Google, IBM oder Intel erkennen, die sich aktuell im Wettbewerb um den ersten, einem klassischen Computer überlegenen Quantencomputer befinden.

Klassische Bits und Quantenbits

Informationsverarbeitungssysteme bestehend aus integrierten Schaltkreisen sind heute bereits in der Arbeitswelt, im Verkehrswesen oder auch im Haushalt allgegenwärtig und werden in Zukunft verstärkt durch die zunehmende Digitalisierung noch an Bedeutung gewinnen. Die in derartigen Schaltkreisen realisierten Rechenoperationen basieren auf der Booleschen Logik aus dem Jahre 1847 [1]. Zur Durchführung von Berechnungen werden binäre Signale durch logische Gatter wie UND-Gatter oder auch NICHT-Gatter, die in der Regel durch Halbleitertransistoren realisiert werden, auf binäre Ausgangssignale abgebildet. Je mehr dieser Transistoren ein moderner Computerchip aufweist, desto größer ist auch seine Rechenleistung. Gemäß dem Mooreschen Gesetz aus dem Jahre 1965 sollte sich die Anzahl an Transistoren pro Computerchip im Mittel etwa jedes Jahr verdoppeln [2], ein empirisches Gesetz, dem die Entwicklung moderner Prozessorschips bis heute zu unterliegen scheint. Die damit einhergehende Verkleinerung der Strukturgrößen ist aktuell bereits bei 10 nm angekommen (*Cannonlake-Mikroarchitektur*, Intel), für 2019 ist ein Smartphonechip mit einer Strukturgröße von sogar lediglich 7 nm angekündigt (*Snapdragon Chip*, Qualcomm). Werden die Transistorabstände noch weiter verkleinert, so muss unter anderem die Isolierung zwischen den einzelnen Bauteilen zur Vermeidung unerwünschter Spannungsüberschläge deutlich verbessert werden. Gelangt die fortschreitende Miniaturisierung sogar zu Strukturgrößen im Bereich weniger bis einzelner Atomdurchmesser, so können sogar störende quantenmechanische Phänomene zwischen den einzelnen Transistoren wie etwa der Tunneleffekt auftreten. Folglich ist davon auszugehen, dass die Entwicklung neuartiger Computerchips bereits in den kommenden Jahren nicht mehr dem Mooreschen Gesetz folgen wird [3,4].

Eine Alternative zu herkömmlichen Datenverarbeitungsarchitekturen könnte in Zukunft ein Quantencomputer darstellen. Ähnlich einem klassischen Computer, in dem Informationen in Bits mit den beiden üblicherweise mit 0 und 1 bezeichneten Basiszuständen kodiert gespeichert und verarbeitet werden, basiert ein Quantencomputer auf zwei quantenmechanischen Basiszuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Ein Quantenbit (Qubit) kann jedoch im Gegensatz zu einem klassischen Bit nicht nur einen der beiden Basiszustände annehmen, sondern auch jede beliebige Superposition aus den Basisvektoren $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Darüber hinaus erlaubt das quantenmechanische Superpositionsprinzip die Verschränkung mehrerer gleichartiger Qubits, wodurch etwa das gleichzeitige Lösen mehrerer Teilaufgaben eines parallelisierbaren Problems ermöglicht wird [5]. Geeignete Probleme, wie etwa die in Zeiten von *big data* immer relevanter werdende Herausforderung der Lokalisierung eines Eintrags in einer unsortierten Datenbank, können daher mit einem Quantencomputer etwa durch Anwenden des Grover-Algorithmus wesentlich schneller gelöst werden [6]. Eine weitere durch Quantentechnologie beschleunigte Aufgabe ist die für die Kryptographie relevante Zerlegung einer Zahl in ihre Primfaktoren. Ein hierzu von Shor et al. [7] entwickelter Quantenalgorithmus bietet den fundamentalen Vorteil gegenüber klassischen Algorithmen, dass ein nichttrivialer Teiler einer ganzen Zahl in polynomialer Laufzeit ermittelt werden kann. Da zahlreiche klassische Kryptographieverfahren auf der Annahme beruhen, dass kein Faktorisierungsverfahren mit einer derartigen Laufzeit existiert, bietet der Shor-Algorithmus das Potenzial, jede derartige klassische Verschlüsselung zu knacken und somit obsolet zu machen. Die Quantenkryptographie als weitere Teildisziplin der Quanteninformationsverarbeitung erlaubt hingegen eine absolut abhörsichere Kommunikation, eine Möglichkeit, zu der kein klassisches Pendant existiert [8]. Bennett et al. [9] veröffentlichten 1984 mit BB84 das erste Protokoll zum sicheren Austausch eines Kommunikationsschlüssels, das Anfang der 2000er Jahre auch experimentell umgesetzt werden konnte [10, 11]. Mittlerweile sind Systeme zum abhörsicheren Austausch von Quantenschlüsseln etabliert und sogar kommerziell erhältlich (ID Quantique SA, Genf).

Das Potenzial der Quanteninformationsverarbeitung stellte in den vergangenen Jahren einen derart starken Antrieb dar, dass selbst die satellitengestützte Verschränkung zweier Qubits über eine Distanz von mehr als 1200 km angegangen und demonstriert wurde [12]. Die QIP-Forschung konnte in den vergangenen Jahren neben der Realisierung dieses Leuchtturmprojekts aber auch allgemein zeigen, dass in dem Speichern, Übermitteln und auch Verarbeiten von Informationen in Quantensystemen enorme Stärken liegen [13], die wiederum Visionen beflügelten bis hin zu einem Quanteninternet, das ähnlich dem klassischen Internet zukünftig mehrere auch weit entfernte Quantenprozessoren miteinander vernetzen könnte [14, 15].

Ein wichtiger Schritt zur Realisierung derartiger Projekte stellt unter anderem die Erforschung quantenmechanischer Systeme als potenzielle Kandidaten zur Verwirklichung eines Qubits dar. Um die Eignung eines Systems als Quantenbit feststellen zu können, formulierte DiVincenzo [16] einen Anforderungskatalog mit den fünf nachfolgend dargelegten Kriterien:

1. Das physikalische System soll skalierbar sein. Grundvoraussetzung hierfür ist unter anderem die Ununterscheidbarkeit der einzelnen Qubits.
2. Die Qubits sollen in einem gemeinsamen und bekannten Zustand initialisierbar sein.

3. Die Kohärenzzeiten der relevanten verschränkten Zustände, d. h. die Zeiten bevor diese in einen wahrscheinlichkeitsverteilten Zustandsmix zerfallen, sollen hinreichend groß sein, insbesondere deutlicher länger als die Rechenzeiten der logischen Operationen.
4. Für den verwendeten Qubit-Typ soll ein universeller Satz von logischen Quantengattern verfügbar sein. In der Vergangenheit konnte bereits gezeigt werden, dass selbst Rechenoperationen mit mehreren Qubits auf Sequenzen von Ein- und Zweikörperinteraktionen zurückgeführt [17] und die Zweikörperinteraktionen wiederum durch ein einziges Kontrolliertes-Nicht-Gatter ausgedrückt werden können [18].
5. Der Zustand eines Qubits soll zuverlässig und im Idealfall zerstörungsfrei messbar sein und zwar derart, dass die Zustände der anderen Qubits des physikalischen Systems durch die Messung nicht beeinflusst werden.

Neben festkörperbasierten Systemen wie Quantenpunkten [19,20] in Halbleitermaterialien oder auch Defektzentren in Diamant wie dem Silizium-Fehlstellenzentrum [21–23] oder dem Stickstoff-Fehlstellenzentrum [24–26] wurden in den vergangenen Jahren auch zahlreiche weitere Systeme als Kandidaten zur Realisierung eines Qubits untersucht, wie etwa gefangene Ionen [27–31], supraleitende Schaltkreise [32] oder auch Kernspins in Molekülen [33]. Alle angesprochenen Systeme erfüllen einen Großteil der von DiVincenzo geforderten Kriterien. Der Anforderungskatalog bietet aber keine Gewichtung der einzelnen Kategorien an, sondern stellt lediglich Mindestanforderungen an ein System hinsichtlich seiner Eignung als Qubit. Nach aktuellem Stand der Forschung weist jedes der genannten Quantensysteme charakteristische Stärken und Schwächen auf. Des Weiteren legen erste experimentelle Vergleiche etwa von gefangenen Ionen einerseits und supraleitenden Schaltkreisen andererseits nahe, dass implementierter Algorithmus und Quantensystem aufeinander abgestimmt sein müssen, um eine optimale Performanz zu zeigen [34].

Das NV-Zentrum in Diamant als Basiskomponente in der QIP

Die Kohlenstoffkonfiguration Diamant ist in den vergangenen Jahrzehnten aufgrund ihrer herausragenden Materialeigenschaften vermehrt in den Fokus der QIP-Forschung gerückt. Diamant weist zum einen aufgrund der 7,3 eV großen elektronischen Bandlücke eine breitbandige optische Transparenz beginnend bei 230 nm im ultravioletten über den gesamten sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums bis weit hinein in den infraroten Spektralbereich auf [35]. Des Weiteren können in das Diamantgitter Fremdatome derart eingebaut werden, dass diskrete Energieniveaus innerhalb der Bandlücke ausgebildet und Licht mit geeigneten Wellenlängen absorbiert und emittiert werden kann. Die breitbandige Transparenz erlaubt die Untersuchung derartiger Defektzentren mit optischen Analysemethoden oder auch deren Integration in optische Datenverarbeitungssysteme. Des Weiteren zeichnet sich Diamant aufgrund der starken Gitterbindungen durch eine beachtliche, im Vergleich zu Kupfer etwa achtmal so große Wärmeleitfähigkeit aus [36], die insbesondere auch Tieftemperaturanwendungen ermöglicht. Diamant kann darüber hinaus nahezu isopenrein und damit verbunden frei von Kernspins synthetisch hergestellt werden [37]. Aufgrund des resultierenden niedrigen Kernspinuntergrunds in Kombination

mit der Möglichkeit, Defektzentren mit diskreten Energieniveaus innerhalb der elektronischen Bandlücke im ansonsten perfekten Kristallgitter gezielt erzeugen zu können [38–42], ist Diamant als Basismaterial für die Realisierung sowohl eines Qubits als auch weiterer breitgefächerter QIP-Architekturen bestens geeignet [43–45].

Bereits 1976 gelang zwar der Nachweis, dass die Photolumineszenz aus Diamant bei einer Wellenlänge von 637 nm auf das Stickstoff-Fehlstellenzentrum (*nitrogen vacancy center*, NV-Zentrum) zurückzuführen ist [46], dessen Eignung als Einzelphotonenquelle konnte jedoch erst später im Jahre 2000 experimentell bestätigt werden [47]. Ab den 2000er Jahren konnte das NV-Zentrum als prominentester Vertreter der strahlenden Defektzentren in Diamant seine Eignung als Qubit und somit als eine zentrale Basiskomponente für verschiedenliche Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung bereits mehrfach unter Beweis stellen [24–26]. In der vorliegenden Arbeit wird sich daher auf das NV-Zentrum in Diamant beschränkt.

Der Grundzustand des NV-Zentrums weist eine Tripletstruktur mit zwei Unterniveaus auf, denen die Spinprojektionen $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ zugeordnet werden können [48]. Deren Nullfeldaufspaltung liegt mit etwa 2,88 GHz im Frequenzbereich gängiger Mikrowellenquellen [49]. Jelezko et al. [50] konnten 2004 mithilfe von Mikrowellenpulsen erstmals die kohärente Manipulation des NV-Elektronenspins demonstrieren. Darüber hinaus kann der Spinzustand des NV-Zentrums etwa durch kontinuierliche Bestrahlung mit einem grünen Laser sogar bei Raumtemperatur im $m_s = 0$ -Grundzustand initialisiert sowie rein optisch ausgelesen werden [51]. Ermöglicht werden Spininitialisierung und Spinauslese durch spinabhängige Übergänge vom angeregten Zustand in einen metastabilen Zwischenzustand. Aus dessen Langlebigkeit resultiert eine spinabhängige Photolumineszenz des NV-Zentrums und aus dessen präferiertem Zerfall in den $m_s = 0$ -Grundzustand eine Spininitialisierung innerhalb nur weniger optischer Zyklen. Heute können Polarisationsgrade von bis zu 80 % bei Raumtemperatur [26, 52] und über 99 % bei Flüssigheliumtemperaturen [53] sowie typische Photolumineszenzkontraste bei der optischen Spinauslese um 30 % nach Präparation im Spinzustand $m_s = 0$ bzw. $m_s = \pm 1$ erreicht werden [54]. Bei Flüssigheliumtemperaturen konnte zumindest unter resonanter Laseranregung ein Photolumineszenzkontrast von 89 % bei der optischen Spinauslese erzielt werden, der die Bestimmung des Spinzustands in einem einzigen Ausleseschritt (*single shot readout*) ermöglichte [53].

Liegt am Ort des NV-Zentrums ein geeignet orientiertes Magnetfeld vor, so spaltet der $m_s = \pm 1$ -Grundzustand in die Zustände $m_s = +1$ und $m_s = -1$ auf, die in Folge dessen durch Mikrowellenpulse auch unabhängig voneinander populiert werden können. Die Stärke der Aufspaltung kann etwa durch Anwendung des Verfahrens der optisch detektierten magnetischen Resonanz (*optically-detected magnetic resonance*, ODMR) experimentell ermittelt werden. Die unmittelbare Abhängigkeit dieser Zeeman-Aufspaltung von der Stärke des lokalen Magnetfelds ermöglicht insbesondere den Einsatz eines NV-Zentrums als Magnetfeldsensor [55–57], der bezogen auf die Auflösung mit supraleitenden Quantenmagnetfeldsensoren konkurrieren und als entscheidender Vorteil auch bei Raumtemperatur betrieben werden kann [58].

Mithilfe der entwickelten Mechanismen zur Spininitialisierung, Spinmanipulation und Spinauslese konnten in der Vergangenheit bereits die Funktionsfähigkeit logischer Gatter demonstriert sowie auch erste Quantenalgorithmen unter Verwendung von NV-Zentren als Quantenbits durch-

geführt werden [59]. Die Umsetzung derartiger Quantenalgorithmen erfordert außerordentlich lange Kohärenzzeiten, wie sie der NV-Elektronenspin in isotopenreinem Diamantmaterial mit bei Raumtemperatur bereits gemessenen Kohärenzzeiten von mehr als 2 ms durchaus aufweisen kann [60,61]. In herkömmlichen Diamantproben, die neben dem kernspinfreien Isotop ^{12}C auch zu etwa 1,1 % aus dem Kohlenstoffisotop ^{13}C mit einem Kernspin von $I = 1/2$ aufgebaut sind, ist die Kohärenzzeit hingegen aufgrund des auf das Kernspinbad zurückzuführenden fluktuierenden Magnetfelduntergrunds üblicherweise auf wenige Mikrosekunden reduziert. Die zeitliche Entwicklung des Elektronenspins kann jedoch von der Diamantumgebung derart dynamisch entkoppelt werden, dass selbst für den herkömmlichen Isotopenmix Kohärenzzeiten von mehr als einer Sekunde erzielt werden konnten [62,63]. Die Kombination derartiger Kohärenzzeiten im Millisekunden- bis Sekundenbereich mit den Zeitkonstanten der Spinmanipulationen im Nanosekundenbereich erlaubt die Durchführung von mehr als einer Million kohärenter Operationen mit einem einzelnen NV-Elektronenspin und dies sogar bei Raumtemperatur [64].

Aufgrund der langen Kohärenzzeit des NV-Elektronenspins eröffnet sich darüber hinaus die Möglichkeit, die in einem NV-Zentrum gespeicherte Quanteninformation über magnetische Dipolübergänge auf den langlebigen Kernspin des intrinsischen Stickstoffatoms zu übertragen. Ein erster Quantenspeicher konnte auf diese Art und Weise bereits realisiert werden [65]. Eine geeignete Kopplung zwischen Kernspin und Elektronenspin erlaubte ferner die Messung des vorliegenden Kernspinzustands in einem einzigen Ausleseschritt [66]. Durch einen auf einen Hyperfeinübergang abgestimmten Mikrowellenpuls konnte der NV-Elektronenspin in Abhängigkeit des Kernspinzustands auf den Elektronenspinzustand $m_s = 0$ oder $m_s = -1$ projiziert und im Anschluss optisch ausgelesen werden. Diese Projektion entspricht somit einem Kontrollierten-Nicht-Gatter zwischen dem NV-Elektronenspin und dem Kernspin des intrinsischen Stickstoffatoms.

Während die Erfüllung der DiVincenzo Kriterien 2 bis 5 in den dargelegten *proof-of-principle* Experimenten bereits demonstriert werden konnte, stellt die Umsetzung der Skalierbarkeit für das NV-Zentrum wie auch für alle anderen angesprochenen Quantensysteme weiterhin eine Herausforderung dar. In den vergangenen Jahren konnten immerhin eine Kopplung der Elektronenspins zweier NV-Zentren, die in einem Abstand von 10 nm in der selben Probe inkorporiert waren [26], sowie auf einer derartigen Kopplung aufbauend eine Verschränkung zweier etwa 25 nm entfernter NV-Zentren gezeigt werden [67]. Da die Kopplung über eine kurzreichweitige Dipolwechselwirkung zwischen den Elektronenspins erfolgte und darüber hinaus die Erzeugung ununterscheidbarer Qubits in festkörperbasierter Systeme sowie auch die gezielte optische Adressierung und Mikrowellenmanipulation von dicht angeordneten einzelnen NV-Zentren nach heutigem Stand äußerst schwierig sind, konnte eine Erweiterung auf mehr als zwei verschränkte Qubits in einer einzigen Diamantprobe jedoch bis heute nicht realisiert werden.

Ein zu einer dichten Matrix aus Quantenemittern alternativer Ansatz ist die Realisierung eines hybriden Quantennetzwerks bestehend aus NV-Zentren als festen Qubits, die die Quanteninformationen erzeugen, verarbeiten und auch speichern können und Photonen als mobilen Qubits, die für den Austausch der Informationen zwischen den einzelnen NV-Zentren des Quantennetzwerks zuständig sind. Photonen sind aufgrund ihrer Immunität gegenüber potenziellen Wechselwirkungen und der damit verbundenen langen Kohärenzzeit zur langreichweitigen Informationsübertra-

gung bestens geeignet und können darüber hinaus in herkömmlichen Glasfaserkabeln verlustarm geführt werden. Werden die Quantenzustände zweier NV-Zentren auf die von ihnen emittierten Photonen übertragen, wie durch die Verschränkung eines NV-Elektronenspins mit der Polarisation eines emittierten Photons bereits erfolgreich demonstriert werden konnte [68], so kann anschließend eine Verschränkung der Quantenzustände der beiden NV-Zentren durch Interferenz der emittierten Photonen an einem Strahlteiler erzielt werden. Eine derartige Hong-Ou-Mandel Interferenz konnte unter anderem durch eine exakte Abstimmung der NV-Emissionslinien mithilfe elektrischer Felder sowie einer spektralen Filterung der Nullphononenlinien experimentell realisiert werden [69,70]. Aufbauend auf diesen Ergebnissen gelang schließlich auch die Demonstration der Verschränkung zweier NV-Zentren in räumlich bis zu 1,3 km getrennten Kryostaten [71, 72] sowie zusätzlich auch der Nachweis einer gleichsam erzielten schlupflochfreien Verletzung der Bellschen Ungleichung [72].

Ein Hindernis bei der Durchführung derartiger Verschränkungsexperimente ist stets die Länge der zur Datenerfassung benötigten Zeitspanne. Ursache hierfür ist zum einen, dass zur Verschränkung zweier Quantenzustände mithilfe einer projektiven Messung (Zwei-Photonen-Interferenz am Strahlteiler) ausschließlich über die Nullphononenlinie (*zero phonon line*, ZPL) emittierte Photonen herangezogen werden können. Da die Emission des NV-Zentrums ein ausgedehntes phononisches Seitenband aufweist und nur etwa 3% der Gesamtemission über die ZPL erfolgt, steht zur Erzeugung eines verschränkten Zustands nur ein geringer Anteil der insgesamt emittierten Photonen zur Verfügung. Da des Weiteren etwa bei der demonstrierten Verschränkung über 1,3 km Leitungsverluste in den Glasfaserkabeln sowie eine reduzierte Ununterscheidbarkeit der Photonen aufgrund von spektralen Sprüngen bei Veränderungen der lokalen Ladungsumgebung trotz umfangreicher Kompensationsmaßnahmen vorlagen [69], betrug die Erfolgsquote lediglich etwa 1 zu 6 Milliarden [72]. Der Messzyklus dauerte daher 220 h an und lieferte nur etwas mehr als ein erfolgreiches Ereignis pro Stunde.

Um in Zukunft in größeren Quantennetzwerken mehr als nur zwei Qubits miteinander verschränken zu können, sollte die bislang erzielte niedrige Verschränkungsrate deutlich erhöht werden. Eine Erhöhung der Emissionsrate der NV-Zentren sowie zusätzlich des Anteils der ZPL-Photonen an der Gesamtemission und eine damit einhergehende optimierte Verschränkungsrate kann etwa durch die Kopplung der Emitter an einen Mikroresonator erzielt werden [73]. Eine derartige Emitter-Resonator-Kopplung wird von allen Autoren der genannten Veröffentlichungen zur langreichweitigen Verschränkung von NV-Zentren als essenziell notwendige Verbesserung zur Umsetzung der von DiVincenzo geforderten Skalierbarkeit angeführt [71, 72].

Kopplung von NV-Zentren an Mikroresonatoren

Die Kopplung eines Quantenemitters an einen Resonator bewirkt grundsätzlich eine Veränderung des Emissionsverhaltens im Vergleich zur Emission im homogenen Medium. Je nach Stärke der Wechselwirkung wird dabei zwischen einem starken und einem schwachen Kopplungsregime unterschieden. Im Regime der starken Kopplung dominiert die Kopplungsrate über die Verlusten, wodurch ein kohärenter Austausch zwischen Emitter und Resonatormode bzw. genauer

gesagt zwischen den Zuständen des gekoppelten Systems ermöglicht wird. In der Vergangenheit wurden bereits speziell auf dieses Kopplungsregime abgestimmte Verfahren zur Übertragung eines Quantenzustands von einem Spin-Qubit auf ein Photon als mobiles Qubit und umgekehrt vorgeschlagen [74] und für Atome in Fallen bereits experimentell realisiert [75]. Mit einem derartigen Verfahren könnte der Quantenzustand eines NV-Zentrums zuverlässig auf ein weiteres NV-Zentrum in einem anderen Knotenpunkt eines Quantennetzwerks übertragen und so eine langreichweitige Verschränkung mit hoher Erfolgsquote erzielt werden. Für Festkörpersysteme ist das Erreichen des starken Kopplungsregimes jedoch generell schwierig und für NV-Zentren zumindest mit aktuell herstellbaren Resonatoren noch nicht möglich.

Im schwachen Kopplungsregime dominieren umgekehrt die Verlustraten über die Kopplungsrate, eine reversible Wechselwirkung zwischen Emitter und Resonatormode ist folglich nicht mehr möglich. Die Lebensdauer des angeregten Zustands wird jedoch auch in diesem Kopplungsregime vermindert und damit einhergehend die Gesamtemissionsrate eines gekoppelten Quantenemitters erhöht. Dieses Phänomen wurde erstmals im Jahre 1946 durch Purcell [76] beschrieben und wird daher üblicherweise auch als Purcell-Effekt bezeichnet. Befindet sich die Resonatormode spektral sogar in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums, so wird darüber hinaus der Anteil der ZPL-Photonen an der Gesamtemission gesteigert und der Anteil der Seitenbandphotonen dementsprechend vermindert. Insgesamt kann durch eine derartige Emitter-Resonator-Kopplung die Verschränkungsrate bei einer langreichweitigen Verschränkung zweier NV-Zentren über eine Hong-Ou-Mandel Interferenz erhöht werden [72], ein wichtiger Schritt in Richtung der Umsetzung der von DiVincenzo geforderten Skalierbarkeit. An dieser Stelle sei betont, dass hierzu selbst die heute bereits in einkristallinen Diamantproben herstellbaren Resonatoren trotz ihrer moderaten Gütefaktoren bestens geeignet sind.

Die Kopplung eines NV-Zentrums an eine Resonatormode und der damit einhergehende Purcell-Effekt wirken sich auch auf die durch das Signal-Rausch-Verhältnis (*signal-to-noise ratio*, SNR) quantisierte Unterscheidbarkeit der beiden Spinprojektionen $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ des NV-Elektronenspins und somit auf die durch DiVincenzo geforderte Zuverlässigkeit bei der optischen Spinauslese aus [77]. Der SNR ist bei der Spinauslese im Allgemeinen umso größer, je größer die Anzahl an detektierten Photonen ist. Diese Anzahl wird neben der Anzahl an emittierten Photonen auch durch die Sammeleffizienz beeinflusst. Die Sammeleffizienz kann sich durch die Emitter-Resonator-Kopplung ebenfalls ändern, da die aufgrund des Purcell-Effekts zusätzlich emittierten NV-Photonen zunächst in das Modenfeld und damit durch die Abstrahlcharakteristik der Mode determiniert abgestrahlt werden. Darüber hinaus ist der SNR und somit die Zuverlässigkeit bei der optischen Spinauslese, wie in dieser Arbeit noch ausführlicher dargelegt wird, auch vom Photolumineszenzkontrast zwischen den NV-Spinzuständen abhängig, der ebenfalls durch eine Emitter-Resonator-Kopplung beeinflusst werden kann [78].

Die Kopplung eines NV-Zentrums an eine Resonatormode konnte in einkristallinen Diamantproben sowohl mit Flüstergalerie-Resonatoren [79,80] als auch mit Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen [81–85] erfolgreich demonstriert werden. In Flüstergalerie-Resonatoren erfolgt die Lichtführung durch Totalreflexion in scheibenförmigen oder auch torusförmigen Geometrien. Die erste resonante Überhöhung der Nullphononenlinie eines einzelnen NV-Zentrums in einer ein-

kristallinen Diamantprobe realisierten 2011 Faraon et al. [79] mit einem derartigen Resonatortyp. Als erster wichtiger Schritt zu einer durch eine Resonatorkopplung kontrollierten NV-Emission konnte eine 10-fache Überhöhung der ZPL-Emission und eine durch die Resonatorkopplung bedingte Verkürzung der Lebensdauer von 11,1 ns auf 8,3 ns demonstriert werden. Wenig später konnte durch Hausmann et al. [80] in einem sogar bei Raumtemperatur betriebenen photonischen Netzwerk bestehend aus einem torusförmigen Resonator und einem benachbarten Wellenleiter die Kopplung der Seitenbandemission eines NV-Zentrums an eine Resonatormode gezeigt und mithilfe des Wellenleiters sowie photonischer Lichtauskoppler eine optimierte Sammeleffizienz von 10 % für die emittierten NV-Photonen erzielt werden.

Die Moden von Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen weisen im Vergleich zu den Moden von Flüstergalerie-Resonatoren eine deutlich bessere räumliche Lokalisierung mit Modenvolumina in der Größenordnung von lediglich einer kubischen Wellenlänge auf. Allerdings ist die Herstellung photonischer Kristallresonatoren äußerst anspruchsvoll und die hergestellten Nanostrukturen anfällig für Fabrikationsabweichungen. Zur Realisierung von Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen muss in die einkristallinen Diamantproben ein periodisches Gitter aus mehreren hundert exakt positionierten Luftzylindern mit Durchmessern von etwa 100 nm hergestellt werden. Das periodische Lochmuster ist dabei derart designt, dass eine Bandlücke in der photonischen Bandstruktur vorliegt, die zusammen mit der Totalreflexion an der Grenzfläche Diamant/Luft die Lokalisierung einer optischen Resonatormode in der Mitte der photonischen Kristallstruktur ermöglicht. Aufgrund fundamentaler Fortschritte in der Nanostrukturierung von Diamant konnten in den vergangenen Jahren auch photonische Kristallresonatoren mit hohen Gütefaktoren in wenige hundert Nanometern dicken Diamantmembranen hergestellt und vermehrt auch Kopplungsexperimente mit diesem Resonatortyp erfolgreich durchgeführt werden.

Faraon et al. [81] konnten als wichtigen Meilenstein für die Resonator-Quantenelektrodynamik eine Resonatormode auf die Nullphononenlinie eines in einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur inkorporierten einzelnen NV-Zentrums abstimmen und dadurch eine 70-fache Überhöhung der ZPL-Emission, unter Berücksichtigung eines für NV-Zentren in Volldiamantmaterial üblichen ZPL-Emissionsanteils von 3 %, bei einer Reduktion der Lebensdauer von 13,7 ns auf 4,0 ns demonstrieren. Die Resonatormode wurde hierzu in einem Kryostaten durch die Einleitung von Xenongas und die darauffolgende Kondensation der Gasmoleküle auf der photonischen Nanostruktur gezielt spektral verschoben. Bei zusätzlicher Anwendung einer thermischen Abstimmungstechnik durch Oxidation der Diamantoberfläche gelang auch Hausmann et al. [82] die Abstimmung einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie eines einzelnen NV-Zentrums, hier inkorporiert in einer eindimensionalen photonischen Kristallstruktur. Die ZPL-Intensität konnte nach erfolgter Abstimmung immerhin um einen Faktor 7 erhöht werden. Ebenfalls in einer eindimensionalen photonischen Kristallstruktur konnten Li et al. [83] in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines einzelnen NV-Zentrums neben einer 62-fachen Überhöhung der ZPL-Intensität und einer Reduktion der Lebensdauer von 18,4 ns auf 6,7 ns auch erstmals eine kohärente Manipulation des Elektronenspins des an die Resonatormode gekoppelten NV-Zentrums demonstrieren, bei guten NV-Kohärenzzeiten von über 200 μ s.

Während die bisher dargelegten Kopplungsexperimente allesamt auf einer zufälligerweise vorlie-

genden guten Positionierung der Emitter relativ zu den Modenfeldern beruhten, konnten in den vergangenen Jahren auch erstmals NV-Zentren nach gezielter Implantation an eine Resonatormode gekoppelt werden. Riedrich-Möller et al. [84] konnten durch Anwendung einer hochauflösenden Implantationstechnik [39] die Erzeugung mehrerer NV-Zentren in einem zweidimensionalen photonischen Kristallresonator sowie deren Kopplung an eine Resonatormode demonstrieren und dadurch die NV-Seitenbandemission spektral selektiv überhöhen. Schröder et al. [85] gelang alternativ mithilfe einer Hartmaske aus Silizium, die sowohl als Ätzmaste zur Herstellung der Nanostrukturen als auch als Implantationsmaske fungierte [86], die gezielte Erzeugung sogar einzelner NV-Zentren in ebenfalls zweidimensionalen photonischen Kristallresonatoren. Die Seitenbandemission eines NV-Zentrums konnte bei der Resonanzwellenlänge der Mode um einen Faktor 93 spektral selektiv überhöht und bei einem anderen Resonator nach Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL eine Überhöhung der ZPL-Emission um einen Faktor 5 erzielt werden. Aufgrund dieser vielversprechenden Ergebnisse wird in dieser Arbeit die gezielte Ankopplung von NV-Zentren an Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen in wenige hundert Nanometer dicken einkristallinen Diamantmembranen untersucht. Ein wichtiger Gesichtspunkt ist dabei die Untersuchung der kohärenten Spinmanipulation und des Signal-Rausch-Verhältnis der Spinnmessung von resonator-gekoppelten NV-Zentren. Aus Gründen der praktikablen Herstellbarkeit werden in den in dieser Arbeit dargelegten Simulationen, Herstellungsprozessen und Experimenten ausschließlich zweidimensionale Nanostrukturen zugrunde gelegt.

Übersicht über die Dissertation

Diese Dissertation baut unmittelbar auf den vorangegangenen Arbeiten von Riedrich-Möller et al. [84,87–89] auf, denen als erste unter anderem die Herstellung photonischer Kristallresonatoren per FIB-Strukturierung in dünnen Diamantmembranen sowie auch die gezielte Implantation von Stickstoffionen in derartige Nanostrukturen gelang.

Im Rahmen dieser Dissertation konnte die Nanofabrikation zweidimensionaler photonischer Kristallresonatoren in dünnen freistehenden Diamantmembranen hoher Reinheit demonstriert und hinsichtlich der Reproduzierbarkeit der Fabrikationsprozesse und auch Qualität der hergestellten Resonatoren umfassend verbessert werden. Darüber hinaus konnten die Fundamentalmode eines Resonators erfolgreich auf die Nullphononenlinie von gezielt in das Modenfeld implantierten NV-Zentren abgestimmt und ausgewählte Aspekte der erzielten Emitter-Resonator-Kopplung durch Simulationen und Experimente untersucht werden, wie etwa die durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL hervorgerufene SNR-Erhöhung bei der Spinnmessung oder die wellenlängenabhängige Abstrahlcharakteristik eines an eine Resonatormode gekoppelten Quantenemitters.

Nach der in diesem Kapitel erfolgten Einführung in die Thematik werden in **Kapitel 2** die relevanten Eigenschaften des NV-Zentrums sowie des Basismaterials Diamant dargelegt. In diesem Rahmen wird insbesondere auf die Feinstruktur des NV-Zentrums und darauf aufbauend auf die Möglichkeit der Initialisierung, Manipulation und optischen Auslese des NV-Elektronenspins eingegangen. Im Anschluss daran werden in **Kapitel 3** die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung der Kopplung eines NV-Zentrums an eine Resonatormode auf Basis des Jaynes-Cummings-

Modell erarbeitet und in **Kapitel 4** die im Rahmen dieser Arbeit hierzu eingesetzten Resonatoren eingeführt. Ausgehend von den Maxwellgleichungen wird die Theorie zur Beschreibung der Lichtausbreitung in photonischen Kristallstrukturen erarbeitet sowie die auf der Existenz einer photonischen Bandlücke basierende Funktionsweise eines darin erzeugten Resonators dargelegt. Anschließend wird auf die durchgeführten Simulationen zur Bestimmung der Kenndaten der untersuchten Resonatortypen sowie deren simulationsgestützte Optimierung eingegangen. Im darauffolgenden **Kapitel 5** werden die eingesetzten Versuchsanordnungen zur Durchführung der in den nachfolgenden Kapiteln dargelegten Experimente beschrieben.

In **Kapitel 6** werden die Nanofabrikationsprozesse zur Herstellung zweier Probensysteme mit wenige hundert Nanometer dicken freistehenden Diamantmembranen dargelegt sowie eine umfassende Charakterisierungsmethodik zum Auffinden von zur Resonatorfabrikation geeigneten Probenbereichen vorgestellt, die die reproduzierbare Herstellung photonischer Kristallstrukturen in den Diamantmembranen ermöglicht. In diesem Kapitel werden auch die entwickelten Verbesserungen in der FIB-Strukturierung photonischer Kristalle beschrieben sowie auf die abschließend erfolgte optische Charakterisierung der hergestellten Resonatoren eingegangen.

In **Kapitel 7** werden zunächst die durchgeführten Simulationen zur Bestimmung der Abstrahlcharakteristik von Licht aus den hergestellten photonischen Nanostrukturen dargelegt. In diesem Rahmen wird insbesondere auf das wellenlängenabhängige Verhalten der unter anderem für das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese relevanten Sammeleffizienz eingegangen. Darüber hinaus wird im zweiten Teil des Kapitels die simulationsgestützte Optimierung der Sammeleffizienz durch Anbringen eines Goldspiegels in einem geeigneten Abstand zu einem photonischen Kristallresonator beschrieben sowie auch der umgesetzte Herstellungsprozess eines derart hinsichtlich der Sammeleffizienz optimierten Probensystems vorgestellt.

In **Kapitel 8** werden zunächst die eingesetzte Methodik zur gezielten Implantation von Stickstoffionen in die Modenfelder der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten photonischen Kristallresonatoren sowie die umfangreichen Nachbehandlungsmaßnahmen zur Erzeugung der NV-Zentren dargelegt. Im Anschluss daran werden die Ergebnisse der durchgeführten optischen Charakterisierungen vorgestellt. Im zweiten Teil des Kapitels wird auf die erfolgte Abstimmung einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie der in der Resonatorfläche erzeugten NV-Zentren mithilfe zweier sich ergänzenden Abstimmungstechniken eingegangen. Die experimentell ermittelten Kenngrößen der vorliegenden Emitter-Resonator-Kopplung werden mit den mithilfe eines Ratenvergleichsmodells theoretisch vorhergesagten Werten abgeglichen und Limitierungen herausgearbeitet. Auf diesen Ergebnissen aufbauend wird in **Kapitel 9** die Abschätzung der durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL hervorgerufenen Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese dargelegt. In diesem Rahmen wird insbesondere ein Verfahren aus drei aufeinanderfolgenden Messungen eingeführt, das die zuverlässige Bestimmung des Photolumineszenzkontrastes vor und nach Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL ermöglicht.

In **Kapitel 10** werden abschließend die wichtigsten Ergebnisse der Arbeit zusammengefasst.

2 Defekzentren in Diamant

Teile des Abschnitts 2.1 sind, wörtlich oder auch modifiziert, aus [90] übernommen.

In diesem Kapitel wird zunächst ein Überblick über die zentralen Eigenschaften von Diamant als vielversprechendem Basismaterial für optisch aktive Defekzentren gegeben. Im Anschluss daran werden diese Defekzentren als Quantenemitter in Diamant eingeführt. Nach exemplarischer Betrachtung für die aktuelle QIP-Forschung relevanter Defekzentren wird auf das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Stickstoff-Fehlstellenzentrum näher eingegangen. Für das NV-Zentrum bereits untersuchte und in der Literatur beschriebene Eigenschaften werden zusammenfassend dargelegt, insbesondere wird dabei auf die Kristallstruktur und auf die Besonderheiten der Spektren eingegangen. Nach anschließender Erarbeitung der Feinstruktur und ihrer spezifischen Unterschiede bei Raumtemperatur und tiefen Temperaturen werden darauf aufbauend die erlaubten optischen Übergänge und Lebensdauern der beteiligten Zustände diskutiert. Im letzten Teil des Kapitels wird basierend auf den zuvor erarbeiteten Grundlagen auf die Möglichkeiten der Initialisierung, Manipulation und rein optischen Auslese des NV-Elektronenspins eingegangen.

2.1 Diamant

Kohlenstoff ist eines der auf der Erde am häufigsten vorkommenden Elemente, das aufgrund seiner Elektronenkonfiguration sehr leicht chemische Verbindungen eingeht. Kohlenstoff liegt daher oft im gebundenen Zustand vor, etwa in Wasserstoffverbindungen wie Methan, in Sauerstoffverbindungen wie Kohlenstoffdioxid oder in diversen Metallcarbiden. Darüber hinaus tritt Kohlenstoff in reiner Form etwa als Aktivkohle, Graphen, Ruß oder auch in den bekannten kristallinen Modifikationen Graphit und Diamant auf.

2.1.1 Kristallstruktur und allgemeine Eigenschaften

Diamant kristallisiert ebenso wie beispielsweise Germanium oder Silizium in einem doppelten kubisch flächenzentrierten Gitter (*face centered cubic*, fcc). Ein Gitterplatz wird von jeweils einem Kohlenstoffatom besetzt (Abbildung 2.1a). Die beiden atomaren Basen liegen bei $(0,0,0) \cdot a$ und $(1/4,1/4,1/4) \cdot a$ mit der Gitterkonstanten $a = 3,57 \text{ \AA}$ [91]. Folglich enthält eine Einheitszelle acht und die primitive Einheitszelle zwei Atome.

Ein ungebundenes Kohlenstoffatom weist die Elektronenkonfiguration $1s^1 2s^2 2p^2$ auf. Eingebaut im Diamantgitter werden die beiden $2s$ -Orbitale und die p -Orbitale zu vier sp^3 -Hybridorbitalen

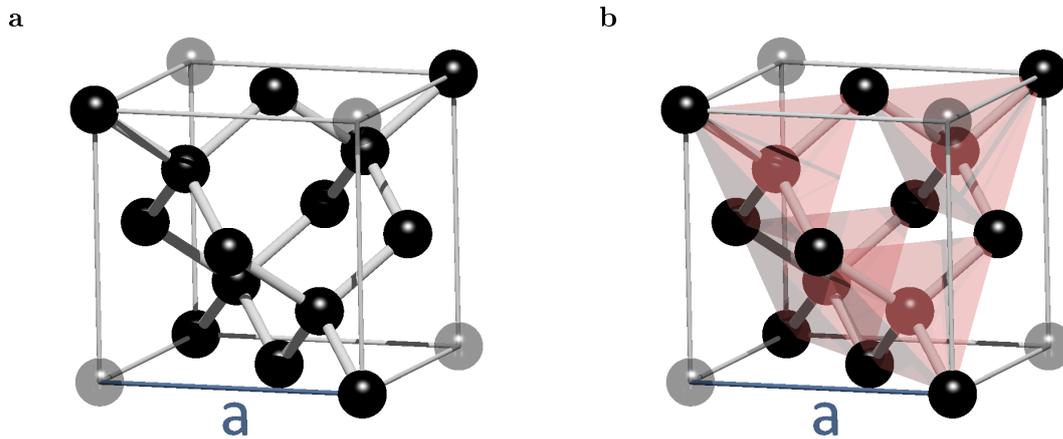


Abbildung 2.1: Kristallstruktur von Diamant. (a) Das Diamantgitter weist eine flächenzentrierte kubische Kristallstruktur mit doppelter Atombasis auf. Eine der Basen liegt im Koordinatenursprung bei $(0,0,0) \cdot a$, die andere Basis bei $(1/4,1/4,1/4) \cdot a$ mit der Gitterkonstanten $a = 3,57 \text{ \AA}$. Die schwarzen Kugeln symbolisieren die Kohlenstoffatome, die weißen Stäbe die Bindungen. (b) Die Kohlenstoffatome ordnen sich im Diamantgitter aufgrund der sp^3 -Hybridisierungen tetraedrisch an.

zusammengefügt, die für die vorliegende tetraedrische Anordnung der benachbarten Kohlenstoffatome verantwortlich sind (Abbildung 2.1b). Jede der vier Bindungen ist mit einem Valenzelektron besetzt. Im Gegensatz dazu liegen bei Graphit lediglich sp^2 -Hybridisierungen vor. Dies führt zu einer Anordnung der Kohlenstoffatome in Schichten aus kovalent gebundenen Sechsecken, wobei die Schichten selbst nur schwach durch Van-der-Waals Kräfte aneinander gebunden sind. Aus diesem Grund weist Graphit eine geringe mechanische Härte auf, wohingegen Diamant aufgrund der sp^3 -Hybridisierung in Kombination mit der kleinen Gitterkonstante als das härteste natürliche Material der Welt mit einer Härte von 10 auf der Skala nach Mohs gilt [92]. Die Bindungsstärke ist darüber hinaus für die exzellente chemische Beständigkeit von Diamant verantwortlich. Diamant reagiert erst bei hohen Temperaturen etwa mit Wasserstoff zu Kohlenwasserstoff oder kann in Metallschmelzen gelöst werden. Wegen seiner chemischen Beständigkeit ist Diamant unter anderem biokompatibel und somit auch für diverse medizinische Anwendungen interessant.

Da der Wärmetransport in dielektrischen Materialien über Gitterschwingungen erfolgt, weist Diamant aufgrund der starken kovalenten Bindungen darüber hinaus eine beachtliche Wärmeleitfähigkeit auf. Diese ist für isopenreinen Diamant etwa achtmal so groß als für Kupfer, dessen Wärmetransport wie bei Metallen üblich vornehmlich über die Elektronenbewegung im Leitungsband erfolgt [36]. Folglich ist Diamant als Material für verschiedenliche Hoch- und Tieftemperaturanwendungen bestens geeignet, Diamantkühlsysteme stellen etwa eine vielversprechende Alternative zu Kupferkühlern in Hochleistungsrechnern oder integrierten Schaltkreisen dar.

Wird Diamant erhitzt, so steigt die Oxidationsrate in Sauerstoffatmosphäre ab einer Temperatur von 600°C signifikant an, ab 800°C kann Diamant vollständig zu Kohlenstoffdioxid umgewandelt werden. In Luftatmosphäre setzt die Oxidation erst bei höheren Temperaturen ab etwa 700°C signifikant ein [93]. In Experimenten hat sich jedoch gezeigt, dass in Luftatmosphäre auch bereits bei einer Temperatur von 450°C zumindest wenige Nanometer dicke Diamantschichten oxidieren

können. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben stellt dies einen nicht zu vernachlässigenden Effekt dar, wie in den Kapiteln 6 und 8 noch näher erläutert wird.

Die Diamantkonfiguration ist thermodynamisch gesehen ein metastabiler Zustand von Kohlenstoff. Im Vakuum beginnt Diamant ab einer Temperatur von 1200 °C in den thermodynamisch stabilen Zustand Graphit überzugehen [94]. Zwischen 1200 °C und 2000 °C liegt sowohl Graphit als auch Diamant vor, ab einer Temperatur von 2000 °C graphitisiert Diamant vollständig [95]. Somit kann die Diamantkonfiguration unter normalen Laborbedingungen bei denen Diamantproben gelagert oder auch optisch untersucht werden dennoch als stabil angenommen werden. Aufgrund der ausgeführten Argumente sollten die untersuchten Diamantproben jedoch in Luftatmosphäre nie über 450 °C , in Sauerstoffatmosphäre nie über 800 °C und im Vakuum nie über 1200 °C erhitzt werden, es sei denn, ein gezieltes Oxidieren oder Graphitisieren wird angestrebt.

2.1.2 Optische Eigenschaften

Die außergewöhnlichen optischen Eigenschaften von Diamant werden vornehmlich durch die große Bandlücke in der elektronischen Bandstruktur hervorgerufen. Im Zentrum der Brillouinzone weist Diamant eine direkte Bandlücke mit einer Energiedifferenz von $7,3\text{ eV}$ auf, die minimale indirekte Bandlücke beträgt $5,5\text{ eV}$ [35]. Die große Bandlücke hat eine optische Transparenz beginnend bei etwa 230 nm im ultravioletten über den gesamten sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums bis weit hinein in den infraroten Spektralbereich zur Folge. Das Emissions- und Absorptionsverhalten im transparenten Wellenlängenbereich wird vollständig durch eventuell vorhandene optisch aktive Defektzentren bestimmt, die lokale Energieniveaus innerhalb der Bandlücke ausbilden. Die Bandlücke kann aufgrund ihrer breitbandigen Ausdehnung eine Vielzahl von derartigen optisch aktiven Defektzentren beherbergen, auf die in Abschnitt 2.2 noch detaillierter eingegangen wird.

Des Weiteren zeichnet sich Diamant durch seinen hohen Brechungsindex zwischen $n = 2,4$ bei 740 nm bis hin zu $n = 2,49$ bei 800 nm aus [96]. Dies bringt für quantenoptische Anwendungen Vor- und Nachteile mit sich. Ist der Diamant von einem Medium mit niedrigerem Brechungsindex umgeben, beispielsweise von Luft mit einem Brechungsindex von nahezu $n = 1$, so sorgt das Phänomen der Totalreflexion dafür, dass Licht aus der Diamantschicht kommend ab einem kritischen Einfallswinkel von etwa 24° total reflektiert wird. Die Totalreflexion ermöglicht die Funktionalität photonischer Strukturen wie etwa optischer Wellenleiter [97] oder auch der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten photonischen Kristallstrukturen, auf deren Funktionsprinzip in Kapitel 4 noch näher eingegangen wird. Andererseits wird durch die Totalreflexion an der Grenzfläche Diamant/Luft die Effizienz, mit der Fluoreszenz aus dem Diamanten aufgesammelt werden kann, gemindert. Etablierte Optimierungstechniken wie etwa das Herstellen von Festkörperimmersionslinsen [53, 98] oder das Strukturieren von Nanotürmen um die Lichtquellen in Diamant herum [99, 100] können das Hindernis der Totalreflexion erfolgreich umgehen und das Aufsammeln der Fluoreszenz so optimieren. Da die in dieser Arbeit untersuchten Defektzentren in photonische Kristallstrukturen inkorporiert werden, sind die genannten Optimierungsmethoden hier jedoch nicht anwendbar. Das Aufsammeln von Licht aus photonischen Kristallstrukturen wird in Kapitel 7 thematisiert sowie angepasste Optimierungstechniken erarbeitet.

2.1.3 Natürlicher Diamant

Bei Raumtemperatur und normalem Umgebungsdruck ist Graphit die thermodynamisch stabile Form von kristallinem Kohlenstoff, Diamant wie bereits angesprochen unter Standardbedingungen lediglich eine metastabile Modifikation. Um auf natürliche Weise zu Diamant anstatt zu Graphit zu kristallisieren, muss Kohlenstoff derart hohen Drücken und hohen Temperaturen ausgesetzt werden, wie sie auf der Erdoberfläche normalerweise nicht anzutreffen sind. Adäquate Bedingungen werden jedoch etwa bei Meteoriteneinschlägen, der Kollision von Himmelskörpern oder auch im Erdinneren unterhalb der Kontinentalplatten erreicht. In etwa 200 km Tiefe herrschen Umgebungsdrücke von etwa 80 kbar und Temperaturen von 1500 °C vor. In diesem Parameterbereich ist Diamant im Phasendiagramm thermodynamisch stabil [101]. Erfolgt der Transport zur kühleren Erdoberfläche jedoch zu langsam, so graphitisiert Diamant mit der Zeit. Der Transport muss folglich rasch erfolgen, nach heutigem Wissensstand ermöglicht der Vulkanismus und die damit verbundenen unterirdischen Magmaströme das Auffinden von diamanthaltigem Gestein an der Erdoberfläche zumindest in geeigneten Erdregionen [102].

Natürliche Diamanten mit ausreichender Reinheit für quantenoptische Experimente wurden in der Vergangenheit bereits gefunden und erfolgreich eingesetzt, wie etwa Nanodiamanten aus einem Meteoriten [103]. Allerdings hängt die genaue Zusammensetzung der terrestrischen Diamanten aufgrund der beschriebenen geologischen Entstehung vom genauen Fundort selbst innerhalb einer bestimmten Mine ab und auch Diamanten aus Meteoriten unterscheiden sich je nach Herkunft des Himmelskörpers und seiner Entstehungshistorie. Die Herstellung hochreiner vergleichbarer Proben ist daher aus natürlichem Diamantmaterial nahezu unmöglich. Aus diesem Grund werden heutzutage in der quantenoptischen Grundlagenforschung fast ausschließlich synthetische Diamanten entweder in hochreiner Form oder mit kontrolliert und deterministisch eingebauten Defekten als Ausgangsmaterial für die Probenherstellung verwendet.

2.1.4 Synthetischer Diamant

Seit 1953 ist es möglich, synthetische Diamanten zu produzieren [104]. Grundsätzlich werden dazu zwei Verfahren eingesetzt, das HPHT-Verfahren (*high-pressure high-temperature*, HPHT) sowie das Verfahren der chemischen Gasphasenabscheidung (*chemical vapour deposition*, CVD). Die beiden Verfahren liefern Diamant mit unterschiedlichen, jeweils für die Herstellungsmethode charakteristischen Eigenschaften. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über beide Prozesse insbesondere im Hinblick auf die erreichbaren Diamantqualitäten gegeben.

Angelehnt an die natürliche Entstehung im Erdinneren war eines der ersten angewendeten Verfahren die Herstellung bei künstlich erzeugten hohen Drücken und Temperaturen, das HPHT-Verfahren. Bundy et al. [105] gelang damit 1955 erstmals die Herstellung der von ihnen als *man-made diamonds* bezeichneten Synthesediamanten. Über Wochen wird bei diesem Verfahren Graphit bei Drücken von mehreren Kilobar und Temperaturen von 1500 °C zusammengepresst und somit die natürliche Entstehung in der Erdkruste nachempfunden. Um den industriellen HPHT-Prozess zu beschleunigen, werden üblicherweise Metalle wie etwa Eisen, Kobalt und Nickel als Katalysatoren eingesetzt. Diese können dabei neben Graphitpartikeln in der Regel in

Form von Carbiden als Verunreinigungen in den Diamanten gelangen. Ferner werden durch den Einsatz der Katalysatoren vermehrt Stickstoffatome (mehrere 100 ppm bis zu 3000 ppm, *parts per million*, also ein Partikel unter einer Million Partikel) in das Diamantgitter eingebaut [101]. In Folge dessen erscheint der so erzeugte Diamant gelblich schimmernd. Heutzutage ist man in der Lage, deutlich reinere HPHT-Diamant bezogen auf den unerwünschten Stickstoffanteil herzustellen. Dazu werden während des Prozesses Stickstofffänger wie etwa Aluminium oder Titan eingesetzt [106]. Der Stickstoffanteil kann so bis auf unter 0,1 ppm reduziert werden. Der Diamant verliert dadurch das stickstofftypische gelbliche Schimmern und erscheint für das menschliche Auge farblos, auch wenn er unter Umständen nicht vollständig stickstofffrei ist. Des Weiteren ist zu beachten, dass der Einsatz der Stickstofffängermetalle den Anteil an Einschlüssen von Metallcarbiden während des Prozesses erhöht. Durch die Zugabe von Kupfer als Zersetzer für die entstandenen Carbide kann der Effekt eingedämmt, aber nicht vollständig unterbunden werden [106].

Ein anderer Ansatz wird bei der CVD-Methode verfolgt. Bei diesem Verfahren wächst der Diamant auf einem Diamantsubstrat (homoepitaktisches Wachstum [107]) oder auf einem geeigneten anderen Substrat (heteroepitaktisches Wachstum [108–111]) auf. Da die Substrate eine ähnliche Gitterkonstante wie Diamant aufweisen sollten, eignet sich hierzu insbesondere Iridium mit einer nur um etwa 7% abweichenden Gitterkonstante. Gitterangepasste Strukturen aus Silizium, Yttriumstabilisiertem Zirkonoxid und Iridium als oberster Schicht ermöglichen ein Wachstum von einkristallinem Diamant sogar auf Wafergröße [111].

Das Diamantwachstum geschieht beim CVD-Prozess in der metastabilen Phase des Kohlenstoffphasendiagramms [101]. Die benötigten Kohlenstoffatome werden in der Regel durch kontrolliertes Einleiten von gasförmigem Methan in die Wachstumskammer eingebracht. In einem Wasserstoffplasma, das meist durch einen glühenden Wolframdraht oder eine Mikrowelle erzeugt wird, wird das Methan dissoziiert, kohlenstoffhaltige Moleküle lagern sich am Substrat zufällig an. Auf der Oberfläche des Substrats bildet sich anschließend entweder eine unerwünschte sp^2 -hybridisierte Form von Kohlenstoff oder der gewünschte Diamant. Das Plasma muss während des gesamten Prozesses eine Temperatur von über 2000 K erreichen, um zusätzlich molekularen Wasserstoff in atomaren Wasserstoff dissoziieren zu können. Dieser wird benötigt, um die aufgewachsenen Schichten während des CVD-Prozesses stets partiell wieder zu zersetzen. Die sp^2 -hybridisierten Schichten oxidieren dabei wesentlich stärker als die sp^3 -hybridisierten Schichten. In Folge dessen wächst auf Dauer hochreiner Diamant auf dem Substrat auf, wohingegen Graphit zuverlässig entfernt wird. Durch Optimierung der Gasflüsse sowie des Plasmas kann ein effektives Diamantwachstum erreicht werden [107]. An dieser Stelle sei nochmals betont, dass beim CVD-Wachstum im Gegensatz zum HPHT-Verfahren keine bestimmte Phase im Kohlenstoffphasendiagramm erreicht werden muss, das Diamantwachstum geschieht durch die erzielte Prozesskinetik.

Mit beiden Verfahren können prinzipiell kleine nanokristalline Diamanten, polykristalline Filme oder auch bis zu mehrere Karat schwere Einkristalle hergestellt werden. Die mit dem jeweiligen Verfahren erreichbare Diamantqualität unterscheidet sich jedoch in zwei entscheidenden Punkten, der Reinheit sowie der vorliegenden Verspannung. CVD-Diamanten enthalten in der Regel

weniger eingeschlossene Fremdatome. Dies liegt darin begründet, dass die zum Diamantwachstum benötigten Gase mit heutiger Technik mit großer Reinheit hergestellt werden können. Folglich sind, ein sauberer CVD-Reaktor vorausgesetzt, kaum Verunreinigungen vorhanden, die in das Kristallgitter eingebaut werden könnten. Mehrere Mikrometer bis Millimeter dicke Diamantplättchen mit einem Stickstoffanteil unter 5 ppb (*parts per billion*, also ein Partikel unter einer Milliarde Partikel) und einem Boranteil unter 1 ppb sind kommerziell erhältlich (*electronic grade* Qualität, ElementSix). Beim CVD-Wachstum können jedoch Fehler im Kristallgitter auftreten, die zu Verspannungen führen. Im Gegensatz dazu sind HPHT-Diamanten in der Regel verspannungsfrei. Die bei der Herstellung vorherrschenden Temperaturen und Drücke sorgen dafür, dass sich die entstehenden Verspannungen unmittelbar entlasten können. In Abhängigkeit der beabsichtigten Anwendung ist folglich zu überlegen, welches Kristallmaterial als Ausgangsmaterial für die Probenfertigung verwendet werden sollte. Da in dieser Arbeit Licht aus stickstoffbasierten Defekten untersucht wird und diese Defekte durch nachträgliches gezieltes Einbringen von Stickstoffionen erzeugt werden, ist ein möglichst stickstofffreier Diamant als Ausgangsmaterial zu wählen. Daher werden in dieser Arbeit ausschließlich in einem CVD-Prozess gewachsene Diamantplättchen in der oben beschriebenen *electronic grade* Qualität verwendet.

Historisch wird Diamant in zwei Typklassen eingeteilt, je nachdem ob Stickstofffremdatome nachweisbar sind oder nicht [112–114]. Typ I-Diamant zeigt eine nachweisbare Stickstoffkonzentration. Liegen die Stickstoffverunreinigungen in Form von zusammenhängenden Bereichen vor, so spricht man von Ia-Diamant, liegen einzelne isolierte Stickstoffatome vor von Ib-Diamant. Fast alle natürlichen Diamanten sind vom Typ Ia (geschätzte 98%), während synthetische Diamanten, die mit dem HPHT-Verfahren hergestellt wurden, in der Regel vom Typ Ib sind. Können keine Spuren von Stickstoff nachgewiesen werden, so wird der Diamant als Typ II klassifiziert. Die gemessene elektrische Leitfähigkeit legt bei diesem Typ die Unterkategorien fest. Bei nicht nachweisbarer Leitfähigkeit liegt ein IIa-Diamant vor, sonst ein Kristall vom Typ IIb. Ursache für die Leitfähigkeit bei IIb-Material ist der Einbau von Boratomen während der Wachstumsphase. In guten CVD-Verfahren können Diamanten vom Typ IIa zuverlässig gefertigt werden. Es ist anzumerken, dass auch Typ II-Diamanten Stickstoffkonzentration von bis zu 100 ppb aufweisen können, da solch geringe Konzentrationen etwa in einem Infrarot-Absorptionsspektrum nicht nachweisbar sind.

2.2 Farbzentren

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt dargelegt, weist die elektronische Bandstruktur von Diamant eine indirekte Bandlücke von 5,5 eV auf, die Diamantfilme im Wellenlängenbereich von 230 nm bis 2,5 μm transparent erscheinen lässt. Dieser Spektralbereich beinhaltet unter anderem den kompletten sichtbaren Teil des elektromagnetischen Spektrums. Werden Fremdatome in das Diamantgitter eingebaut, so bilden die entstandenen Störstellen Energieniveaus innerhalb der Bandlücke aus. In Folge dessen kann Licht mit einer Wellenlänge innerhalb des ansonsten transparenten Bereichs von der Defektstelle absorbiert und emittiert werden. Liegen sehr viele

gleichartige Störstellen vor, so erscheint Diamant aufgrund des kollektiven Absorptionsverhaltens in einer bestimmten für die eingebauten Fremdatome charakteristischen und zur Absorption komplementären Farbe, daher die Bezeichnung *Farbzentren* für derartige Defekte.

In der Quantenphysik werden je nach konkreter Anwendung sowohl Agglomerationen von Farbzentren, auch *Ensembles* genannt, als auch Farbzentren bei sehr geringer Konzentration eingesetzt. Können die Farbzentren isoliert adressiert werden, etwa mit einem geeigneten fokussierten Laserstrahl, so spricht man von einzelnen Farbzentren. In der Vergangenheit konnte bereits gezeigt werden, dass sich bestimmte Farbzentren für verschiedenartige quantenphysikalische Anwendungen, wie beispielsweise als zuverlässige Einzelphotonenquellen, eignen. Eine Übersicht mit ausgewählten Beispielen findet sich etwa in den Literaturen [115–117].

Bevor im nächsten Abschnitt auf das in dieser Arbeit untersuchte Stickstoff-Fehlstellenzentrum näher eingegangen wird, werden im Folgenden einige exemplarische Farbzentren näher vorgestellt, die in der Vergangenheit bereits erfolgreich in quantenphysikalischen Experimenten eingesetzt wurden und immer noch im Interesse der aktuellen Grundlagenforschung sind. Diese gehören allesamt der vierten Hauptgruppe des Periodensystems an und werden daher auch als Gruppe-IV-Farbzentren bezeichnet.

Silizium-Fehlstellenzentrum

Im Jahre 1991 konnten Clark und Dickerson nachweisen, dass eine Emissionslinie bei 738 nm in einer mit Silizium implantierten polykristallinen Diamantprobe eindeutig auf die Anwesenheit von Silizium zurückzuführen ist [118]. Heute ist bekannt, dass ein zuvor in das Diamantgitter eingebrachtes Siliziumatom bei Erhitzen auf Temperaturen über 800 °C ein Silizium-Fehlstellenzentrum (*silicon vacancy center*, SiV-Zentrum) ausbilden kann. Dabei werden zwei Kohlenstoffatome des Diamantgitters durch ein Siliziumatom und eine leere Fehlstelle ersetzt. Das Siliziumatom verortet sich auf einem Zwischengitterplatz zwischen den Positionen der ehemaligen Kohlenstoffatome. Man spricht von einer sogenannten *split vacancy*-Konfiguration [119]. In Folge dessen weist das SiV-Zentrum eine D_{3d} -Symmetrie auf. Wie in Abbildung 2.2a modellhaft dargestellt ist, liegen das Siliziumatom und die freien Gitterplätze entlang der $\langle 111 \rangle$ -Achse des Diamantgitters. Aufgrund der vorliegenden Inversionssymmetrie besitzt das Silizium-Fehlstellenzentrum, genauso wie alle anderen Vertreter der Gruppe-IV-Farbzentren, kein permanentes Dipolmoment. In Folge dessen sind die Emitter immun gegen den Stark-Effekt erster Ordnung und somit immun gegen die Verbreitung ihrer Emissionslinien durch spektrale Diffusion. Wie später noch detaillierter erläutert wird, stellt dieser Verbreiterungsmechanismus etwa beim NV-Zentrum ein großes Problem dar. Das gezielte Einbringen von Silizium und die anschließende erfolgreiche Bildung eines SiV-Zentrums sind sowohl während des Diamantwachstums in CVD-Prozessen [21, 120] als auch nachträglich durch Ionenimplantation [121] möglich.

Das Emissionsspektrum weist bei Raumtemperatur eine bis hinunter zu 1 nm [120, 122] breite Nullphononenlinie zusammen mit einem vibronischen Seitenband auf [120]. Aus diesem Seitenband ragen mehrere für das SiV-Zentrum charakteristische Linien im Bereich von 738 nm bis 810 nm heraus, detailliert beschrieben etwa in [123]. In verspannten Nanodiamanten variieren

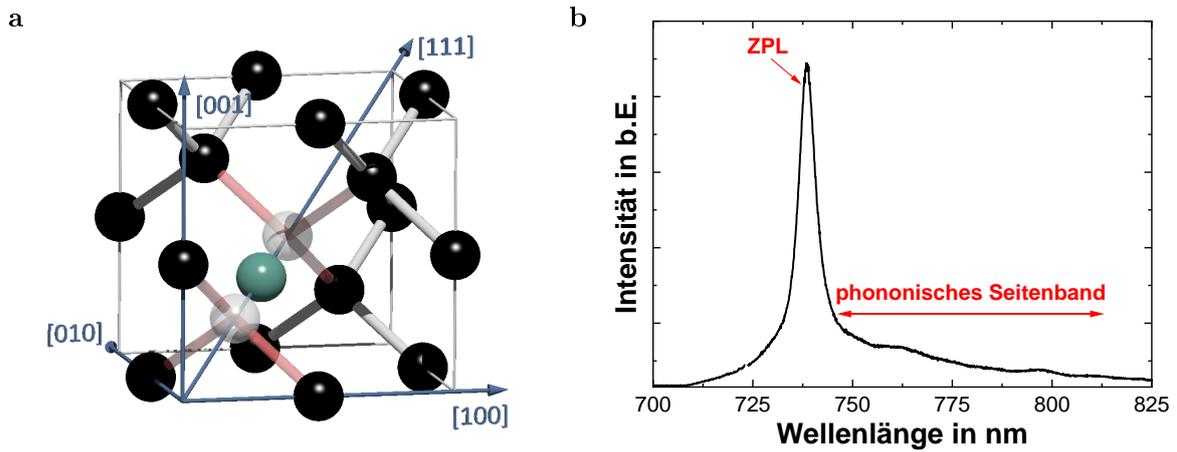


Abbildung 2.2: Das Silizium-Fehlstellenzentrum. (a) Im Diamantgitter sind zwei Kohlenstoffatome durch ein Siliziumatom und eine Fehlstelle ersetzt. Das Siliziumatom (grün) ordnet sich auf einem Zwischengitterplatz an, sodass eine sogenannte *split vacancy* entsteht, dargestellt durch die beiden transparenten Gitterplätze. Siliziumatom und frei gewordene Gitterplätze liegen entlang einer der äquivalenten $\langle 111 \rangle$ -Achsen, hier exemplarisch in der $[111]$ -Richtung gezeichnet. (b) Das Spektrum bei Raumtemperatur weist eine ZPL bei 738 nm auf. Von 738 nm an beginnend schließt sich ein phononisches Seitenband bis ins Infrarote reichend an. Die Anregung erfolgte mit einem nicht-resonanten Laser bei 660 nm.

die spektralen ZPL-Positionen zwischen 715 nm und 835 nm [124]. Im Gegensatz dazu wurden aber auch SiV-Zentren mit fast identischen Wellenlängen der Nullphononenlinie in wenig verspanntem einkristallinem Material vermessen [125, 126]. Ein wesentlicher Vorteil des SiV-Zentrums gegenüber anderen Farbzentren ist der hohe Debye-Waller-Faktor von etwa 80 %, fast die gesamte Photolumineszenz konzentriert sich in der ZPL. SiV-Zentren können darüber hinaus außerordentlich hohe Zählraten von bis zu $6,2 \cdot 10^6$ Photonen/s aufweisen, ein bis dato von keinem anderen Farbzentrum in Diamant erreichter Wert [127]. Ein typisches Raumtemperaturspektrum eines Silizium-Fehlstellenzentrums ist in Abbildung 2.2b dargestellt.

Wird ein einzelnes SiV-Zentrum auf Flüssigheliumtemperaturen abgekühlt, so kann eine Blauverschiebung der Nullphononenlinie um 1 nm beobachtet werden. Des Weiteren spaltet die ZPL in vier charakteristische Linien auf [128, 129]. Aufgrund der relativen Linienintensitäten sowie des temperaturabhängigen Verhaltens der spektralen Verschiebung der Emissionslinien kann auf die elektronische Struktur des SiV-Zentrums geschlossen werden. Der Grundzustand ist ein Dublett mit einer Aufspaltung von 50 GHz, der angeregte Zustand ebenfalls ein Dublett mit 260 GHz Aufspaltung [21]. Weitere Details über die elektronische Struktur des SiV-Zentrums und das spektrale Verhalten bei verschiedenen Temperaturen können etwa in [130] nachgelesen werden. Werden SiV-Ensembles in nicht isotoopenreinem Diamant untersucht, so kann die Feinstruktur bis zu zwölf Linien aufweisen, da die SiV-Zentren je nach beteiligtem Siliziumisotop (^{28}Si , ^{29}Si oder ^{30}Si) bei leicht unterschiedlichen Wellenlängen emittieren [128]. Zumindest bei unverspanntem Diamant kann aufgrund der isotoopenbedingt verschobenen Emissionswellenlängen des SiV-Zentrums eindeutig zwischen ^{28}Si und ^{29}Si unterschieden werden. Diese Unterscheidung ist von

Relevanz für die QIP, da das Isotop ^{29}Si im Gegensatz zum herkömmlichen Isotop ^{28}Si einen Kernspin aufweist. Da Kernspins eine herausragende Kohärenz besitzen, ist die Kopplung des Elektronenspins des Emitters an einen Kernspin von besonderem Interesse etwa für die Realisierung von Quantenspeichern bis hin zu Quantennetzwerken [131].

Die dipolartige Emission des SiV-Zentrums ist bei Raumtemperatur linear entlang der $\langle 111 \rangle$ -Richtung des Diamantkristallgitters polarisiert [21, 132]. Bei Flüssigheliumtemperaturen weisen die beiden inneren Linien weiterhin eine Polarisation entlang dieser Kristallachse auf, die äußeren Linien eine Polarisation senkrecht dazu. Da die inneren Linien jedoch die wesentlich höheren relativen Intensitäten aufweisen, bleibt die lineare Polarisation entlang der $\langle 111 \rangle$ -Richtung auch bei Flüssigheliumtemperaturen dominierend. Aufgrund dieser linearen Polarisation und den hohen Zählraten ist das SiV-Zentrum ein vielversprechender Kandidat für die Verwendung als Qubit. Wird ein externes Magnetfeld angelegt, so kann der Elektronenspin unter resonanter Anregung mit Laserlicht unmittelbar initialisiert, kontrolliert und ausgelesen werden [131, 133]. Darüber hinaus wurden in den vergangenen Jahren bereits optisch kontrollierte Rabi-Oszillationen, Ramsey-Interferenzen und Hahn-Echo-Sequenzen erfolgreich demonstriert [23, 134, 135]. Die Kohärenzzeit für den Spin im Grundzustand wurde mittels *coherent population trapping* gemessen und beträgt etwa $T_2^* = 45 \text{ ns}$ [136]. Experimente bei Temperaturen im Millikelvinbereich haben ferner gezeigt, dass die Kohärenzzeit durch weiteres Abkühlen gesteigert werden könnte [135]. Durch eine dynamische Entkopplung des Elektronenspins von der Diamantumgebung konnten sogar Kohärenzzeiten von mehr als 10 ms erreicht werden [137].

Die charakteristische Nullphononenlinie bei 738 nm wird dem negativ geladenen SiV^- -Farbzentrum zugeordnet. Das Fehlstellenzentrum kann ferner im neutralen Ladungszustand SiV^0 vorliegen mit einer ZPL bei 946 nm [138]. In dieser Arbeit ist mit dem Bezeichner SiV-Zentrum stets das für die Quantenoptik relevante negativ geladene Farbzentrum gemeint.

Germanium-, Zinn- und Blei-Fehlstellenzentrum

In den vergangenen Jahren wurde die Suche nach für die Quantenoptik geeigneten Farbzentren in Diamant auf weitere Elemente der vierten Hauptgruppe ausgedehnt. Folgt man dem Periodensystem, so stehen unter Silizium ferner die Elemente Germanium, Zinn und Blei in dieser Gruppe. Seit 2015 ist ein Germanium-Komplex [139–141] mit einer schmalbandigen Emissionslinie bei etwa 602 nm, seit 2017 ein Zinn-Komplex [142] mit einer Nullphononenlinie bei etwa 619 nm und seit 2019 ein Blei-Komplex [143] mit einer Nullphononenlinie bei etwa 520 nm in den Fokus des Interesses der QIP-Forschung gerückt.

Stand der Wissenschaft heute ist, dass ein Germaniumatom auf einem Zwischengitterplatz zwischen zwei Fehlstellen ein Germanium-Fehlstellenzentrum (GeV-Zentrum) bildet. Wie auch beim SiV-Zentrum liegt eine *split vacancy*-Konfiguration vor. Das GeV-Zentrum weist folglich ebenfalls eine D_{3d} -Symmetrie sowie eine dem SiV-Zentrum ähnliche Feinstruktur auf, mit einer damit verbundenen Aufspaltung der ZPL in vier Linien bei Flüssigheliumtemperaturen [144]. GeV-Zentren konnten sowohl durch Ionenimplantation mit erreichten Linienbreiten bei Raumtemperatur zwischen 6 nm und 7 nm als auch durch Einbringen während des CVD-Prozesses mit Linienbreiten

zwischen 4 nm und 5 nm erzeugt werden [139]. Der Debye-Waller-Faktor beträgt etwa 60%, die Lebensdauer des angeregten Zustands liegt zwischen 1,4 ns und 6 ns [139, 144].

Das Zinn-Fehlstellenzentrum (SnV-Zentrum) ist analog zum SiV-Zentrum aus einem Zinnatom auf einem Zwischengitterplatz zwischen zwei Fehlstellen aufgebaut [142]. Die Symmetrie ist ebenfalls eine D_{3d} -Symmetrie. Auch die Feinstruktur ist analog zum SiV-Zentrum und GeV-Zentrum geartet, die Nullphononenlinie spaltet bei Flüssigheliumtemperaturen ebenso in vier Linien auf. Das Grundzustandsdublett ist jedoch mit 850 GHz energetisch deutlich stärker aufgespalten als dies bei den beiden anderen angesprochenen Vertretern der Hauptgruppe vier der Fall ist (zum Vergleich: SiV-Zentrum 50 GHz [21], GeV-Zentrum 181 GHz [141]). Dadurch erhofft man sich potenziell größere Spinkohärenzzeiten und eine verbesserte Eignung als Quantenspeicher. Trotz einer im Vergleich zum SiV-Zentrum höheren Lebensdauer von etwa 5 ns weisen untersuchte SnV-Zentren mit $530 \cdot 10^3$ Photonen/s (Vergleich SiV-Zentrum bei gleicher experimenteller Konfiguration: $56 \cdot 10^3$ Photonen/s [126]) deutlich höhere Zählraten auf. Die Quanteneffizienz wird mit etwa 0,8 angegeben (Vergleich SiV-Zentrum: bis zu 0,3). Die Linienbreiten bei Raumtemperatur bewegen sich mit 6 nm in der Größenordnung derer des GeV-Zentrums [142].

Das Blei-Fehlstellenzentrum (PbV-Zentrum) ist analog aus einem Bleiatom auf einem Zwischengitterplatz zwischen zwei Fehlstellen aufgebaut [143]. Die Symmetrie ist ebenfalls eine D_{3d} -Symmetrie. Auch die Feinstruktur ist analog zu den anderen Gruppe-IV-Farbzentren geartet, die Nullphononenlinie spaltet bei Flüssigheliumtemperaturen ebenso in vier Linien auf. Das Grundzustandsdublett ist sogar mit 5700 GHz energetisch noch stärker aufgespalten als dies beim SnV-Zentrum der Fall ist. Sättigungsmessungen geeigneter einzelner Emitter sowie Bestimmungen der Quanteneffizienz stehen für das PbV-Zentrum nach heutigem Stand noch aus.

Eine Hürde zumindest bei der Herstellung von SnV-Zentren stellen jedoch die erforderlichen Bedingungen zur Erzeugung der Farbzentren dar, die Proben müssen hierzu unter anderem Temperaturen von 2100 °C ausgesetzt werden [142]. Damit Diamant bei diesen hohen Temperaturen nicht wie üblich graphitisiert, müssen Drücke von etwa 77 kbar in einer Wasserstoffatmosphäre eingehalten werden. Über diese technische Möglichkeit verfügen aktuell nur wenige Forschungseinrichtungen. Ein Erhitzen auf die sonst etwa für die Erzeugung von SiV-Zentren üblichen 1200 °C hat beispielsweise bei SnV-Zentren viele störende Nebenlinien zwischen 595 nm und 646 nm zur Folge und bewirkt mitunter eine zwar Lebensdauer-begrenzte, aber inhomogen verbreiterte Nullphononenlinie [145].

2.3 Das Stickstoff-Fehlstellenzentrum

Bereits 1971 wurde das erste Spektrum eines Ensembles von NV-Zentren publiziert [146], ehe Davies und Hamer 1976 der Nachweis gelungen ist, dass die Emission von Licht bei einer Wellenlänge von 637 nm auf das NV-Zentrum zurückzuführen ist [46]. Heute ist bekannt, dass das Stickstoff-Fehlstellenzentrum aus einer Gitterfehlstelle und einem Stickstoffatom besteht, das ein Kohlenstoffatom im Diamantgitter ersetzt (Abbildung 2.3a). Das Stickstoffatom und die Fehlstelle sind dabei mit gleicher Wahrscheinlichkeit entlang einer der vier äquivalenten $\langle 111 \rangle$ -Achsen

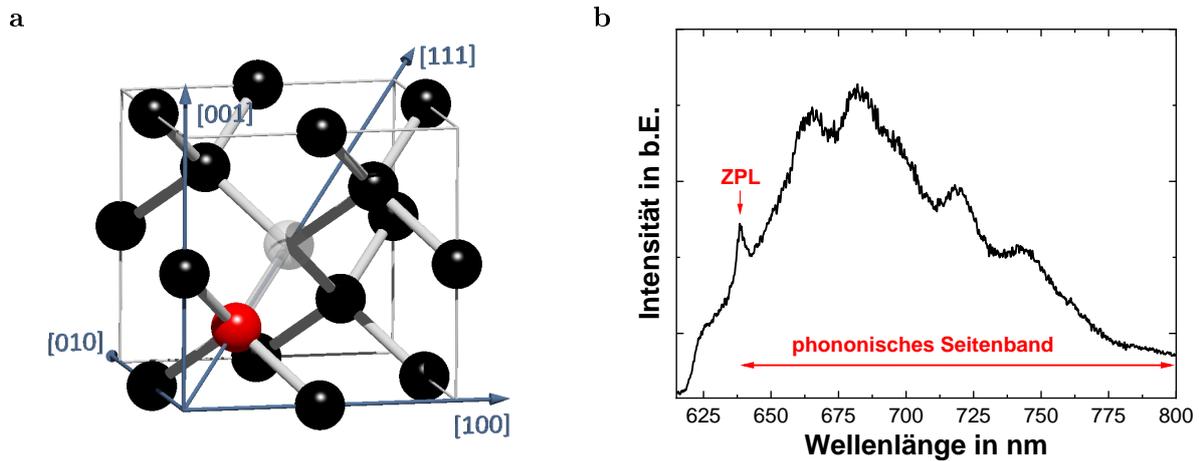


Abbildung 2.3: Das Stickstoff-Fehlstellenzentrum. (a) Im Diamantgitter besetzt ein Stickstoffatom die Gitterposition eines Kohlenstoffatoms (rot). Ein benachbarter Gitterplatz bleibt frei. Die vorliegende Symmetrie ist daher eine C_{3v} -Symmetrie. Stickstoffatom und frei gewordener Gitterplatz liegen entlang einer der äquivalenten $\langle 111 \rangle$ -Achsen, hier exemplarisch in der $[111]$ -Richtung gezeichnet. (b) Das Spektrum bei Raumtemperatur weist eine Nullphononenlinie bei 637 nm auf. Von 637 nm an beginnend schließt sich ein phononisches Seitenband spektral bis über 800 nm reichend an. Die Anregung erfolgte mit einem Laser bei 532 nm.

des Diamantgitters orientiert. Das NV-Zentrum weist daher eine C_{3v} -Symmetrie auf.

Um ein NV-Zentrum erzeugen zu können, muss zunächst ein Stickstoffatom im Diamanten vorhanden sein. Einige Diamanttypen weisen bereits von Natur aus einen mehr oder weniger hohen Anteil an Stickstoff auf (Typ I). Ist der Diamant hingegen nahezu stickstofffrei (Typ II), so kann dennoch Stickstoff zum einen nach der Diamantherstellung durch Ionenimplantation eingebracht werden [147]. Des Weiteren besteht die Möglichkeit, Stickstoffatome auch bereits während des Diamantwachstums im CVD-Prozess in der gewünschten Konzentration zu inkorporieren [148]. Wird der mit Fremdatomen versehene Diamant anschließend für mehrere Stunden auf Temperaturen von mindestens 600°C erhitzt, so werden vorhandene Fehlstellen im Gitter beweglich und diffundieren auf einen Gitterplatz neben dem Stickstoffatom. Auf diese Art und Weise wird ein NV-Zentrum gebildet, nach Abkühlen der Probe ist es als stabil anzusehen [46]. Die dazu benötigten Fehlstellen sind üblicherweise bereits im Diamant vorhanden, können aber auch etwa durch Elektronenbeschuss erzeugt werden [147].

Das Spektrum eines NV-Zentrums weist neben der Nullphononenlinie bei 637 nm zusätzlich breite phononische Seitenbande auf. In Emission reichen diese bei der ZPL-Wellenlänge beginnend über 150 nm weit in den nahinfraroten und in Absorption entsprechend in den blauen Spektralbereich hinein. In Abbildung 2.3b ist ein Raumtemperaturspektrum eines NV-Zentrums dargestellt. Man erkennt, dass der Großteil der Emission in das phononische Seitenband emittiert wird, nur etwa 2 – 4% der Photonen werden in die Nullphononenlinie abgestrahlt [149, 150]. Ein ähnliches Verhalten würde auch ein Absorptionsspektrum zeigen, neben der Absorption bei der ZPL würden noch mehrere Absorptionsbande hin zu kürzeren Wellenlängen zu beobachten sein.

Der Debye-Waller-Faktor von $D_w = 2 - 4\%$ hängt direkt mit dem hohen Huang-Rhys-Faktor von $S \approx 3,76$ für das NV-Zentrum über die Relation $D_w = \exp(-S)$ zusammen. Der Huang-Rhys-Faktor gibt die Stärke der Kopplung des optischen Übergangs an Gitterschwingungen an. Ein hoher Huang-Rhys-Faktor bedeutet folglich, dass die Emission und Absorption von Photonen stark mit der Emission und Absorption von Phononen und somit einem stark ausgeprägten vibronischen Seitenband einhergeht. Weitere Details zur vibronischen Struktur des NV-Zentrums sowie dessen Modellierung mithilfe des Modells von Huang-Rhys können etwa in [151] nachgelesen werden. Die scharf begrenzte ZPL und die typischen wohldefinierten vibronischen Seitenbänder lassen darüber hinaus darauf schließen, dass die strahlenden Übergänge zwischen diskreten Energieniveaus so tief innerhalb der Bandlücke des Diamanten erfolgen, dass Valenzband und Leitungsband keinen großen Einfluss mehr haben.

Das NV-Zentrum weist darüber hinaus noch eine weitere Nullphononenlinie im infraroten Bereich des elektromagnetischen Spektrums bei 1042 nm auf [152]. Die Emissionsstärke im Infraroten beträgt jedoch lediglich 0,1 % der Emissionsstärke des NV-Zentrums im sichtbaren Bereich [153]. Ursache für die schwächere Emission ist die elektronische Struktur des NV-Zentrums und die damit verbundenen Übergangswahrscheinlichkeiten für die strahlenden Übergänge, auf die im weiteren Verlauf des Kapitels noch im Detail eingegangen wird.

Bei Flüssigheliumtemperaturen weist die Nullphononenlinie eine im Vergleich zu Raumtemperatur reduzierte Linienbreite auf. Ursache hierfür ist, dass die für die homogene Linienverbreiterung verantwortlichen Mechanismen, insbesondere der Jahn-Teller-Effekt, bei abnehmender Temperatur an Einfluss verlieren [146,154]. Die Linienbreite der ZPL weist eine natürliche untere Schranke auf, die sogenannte natürliche Linienbreite. Nach der Heisenbergschen Unbestimmtheitsrelation $\Delta\nu \cdot T \geq 2\pi$ hängt die Mindestbreite unmittelbar von der Lebensdauer des angeregten Zustands ab. Eine typische Lebensdauer von $T = 12$ ns hat eine natürliche Linienbreite von $\Delta\nu = 13$ MHz zur Folge. Unter resonanter Anregung konnte eine Linienbreite in dieser Größenordnung bereits experimentell bestätigt werden [155]. Da der Anteil der in die Nullphononenlinie emittierten Photonen an der Gesamtemission von deren Breite unberührt bleibt, hebt sich die ZPL bei kalten Temperaturen deutlicher vom Seitenband ab als bei Raumtemperatur. Auf die wichtigsten Mechanismen der Linienverbreiterung wird in Abschnitt 2.3.5 noch näher eingegangen.

Zwei optisch aktive Ladungszustände des Stickstoff-Fehlstellenzentrums sind bekannt. Der bisher beschriebene Zustand mit einer Nullphononenlinie bei 637 nm bezeichnet das negativ geladene NV-Zentrum. Zusätzlich kann auch ein neutraler Ladungszustand vorliegen mit einer ZPL bei 575 nm [49,156]. Aufgrund der spektralen Lage der jeweiligen Nullphononenlinie kann eindeutig zwischen den beiden Ladungszuständen unterschieden werden. Das NV-Zentrum vermag zwar in beiden Ladungszuständen einzelne Photonen zu emittieren, das negativ geladene Zentrum zeichnet sich jedoch durch seine außerordentlich lange Spinkohärenzzeit von mehr als einer Sekunde aus [62,63]. Darüber hinaus kann der Elektronenspin, wie in den folgenden Abschnitten des Kapitels noch näher erläutert wird, sogar bei Raumtemperatur initialisiert, kontrolliert und ausgelesen werden [157,158]. Im Folgenden wird aufgrund der vielversprechenden Eigenschaften eine Einschränkung auf das negativ geladene Zentrum getroffen. Dieses wird in dieser Arbeit durchgehend als NV-Zentrum bezeichnet, ohne zusätzliche Angabe des Ladungszustands.

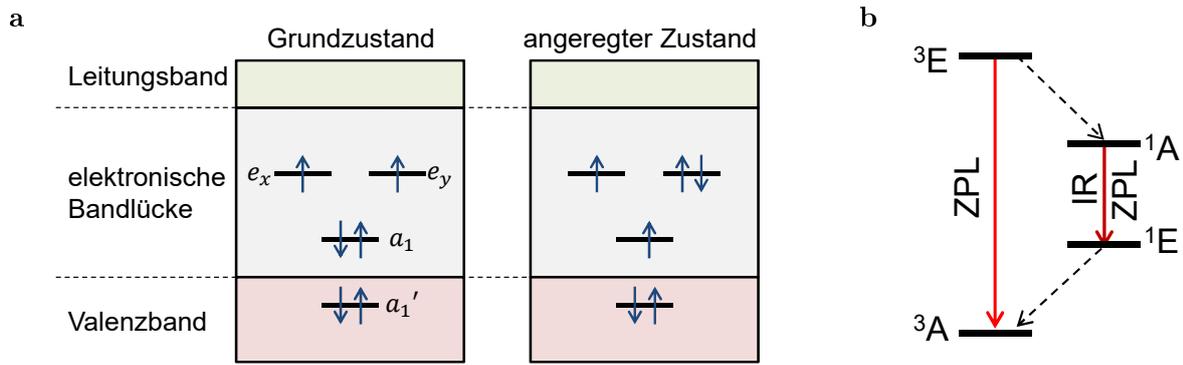


Abbildung 2.4: (a) Molekülorbitalmodell des NV-Zentrums. Im Grundzustand sind die beiden A_1 -Molekülorbitale mit je zwei gepaarten Elektronenspins besetzt, die beiden E -Orbitale mit je einem Elektronenspin. Im angeregten Zustand ist ein weiteres Elektron in das E -Orbital energetisch angehoben. (b) Modell der elektronischen Energieniveaus mit einem 3A -Grundzustand und einem angeregten 3E -Zustand des Triplettsystems sowie einem 1A -Zustand und einem 1E -Zustand des Singulettsystems. Die roten Pfeile stellen die optisch erlaubten strahlenden Übergänge dar, gestrichelte schwarze Pfeile nicht-strahlende Übergänge.

2.3.1 Elektronische Struktur

Die elektronische Struktur des NV-Zentrums wird durch die sechs beteiligten Elektronen bestimmt. Wie anhand der Kristallstruktur in Abbildung 2.3a zu erkennen ist, weist das Stickstoffatom drei direkte Bindungen zu benachbarten Kohlenstoffatomen auf. Von den fünf Elektronen des Stickstoffatoms sind somit noch zwei Elektronen verfügbar. Drei weitere Elektronen werden durch die aufgrund der Fehlstelle ungesättigten Bindungen bereitgestellt. Das sechste Elektron stammt von einem benachbarten Donator [153].

ESR-Spektren legten bereits 1978 nahe, dass das NV-Zentrum einen 3A -Zustand (A -Symmetrie, nicht entartet) aufweisen muss [49]. Heute gilt als gesichert, dass dieser 3A -Zustand der Grundzustand des NV-Zentrums ist [159–161]. Im Molekülorbitalmodell besetzen die sechs Elektronen zwei A_1 -Molekülorbitale, zur Unterscheidung im Folgenden wie in der Literatur üblich mit a_1 und a'_1 bezeichnet, und zwei energetisch entartete E -Molekülorbitale (E -Symmetrie, doppelt entartet), im Folgenden mit e_x bzw. e_y bezeichnet. Im Grundzustand werden die Energieniveaus derart besetzt, dass die beiden A_1 -Molekülorbitale mit je zwei gepaarten Elektronenspins gefüllt sind und zwei ungepaarte Spins die beiden E -Orbitale besetzen (Abbildung 2.4a). Der Gesamtspin beträgt dementsprechend $S = 1$. Die Annahme eines solchen Molekülorbitalmodells für das NV-Zentrum wurde in der Vergangenheit sowohl durch ESR-Messungen als auch *ab initio*-Untersuchungen bestätigt. Während die Energieniveaus a_1 , e_x und e_y tief innerhalb der Bandlücke liegen, verorten die meisten *ab initio*-Untersuchungen das unterste Molekülorbital a'_1 innerhalb des Valenzbandes [162–164].

Neben dem 3A -Grundzustand weist das NV-Zentrum einen angeregten 3E -Zustand auf, der ebenfalls durch ESR-Messungen nachgewiesen werden konnte [154]. Im Molekülorbitalmodell kann man sich den angeregten Zustand so vorstellen, dass ein Elektron vom a_1 -Orbital in das Orbi-

tal e_x oder e_y energetisch angehoben ist (Abbildung 2.4a). Der optisch erlaubte Übergang vom angeregten 3E -Zustand in den 3A -Grundzustand stellt die im Spektrum beobachtete Nullphononenlinie bei 637 nm dar. Neben diesen beiden Triplettzuständen wurden bereits 1978 zwei Singulettzustände 1E und 1A durch gruppentheoretische Überlegungen vorhergesagt [49] und 2008 durch Rogers et al. [152] experimentell bestätigt. Die beiden Singulettzustände liegen energetisch zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand des Triplettsystems. Die Ausmessung von Verspannungen entlang der verschiedenen kristallografischen Achsen hat gezeigt, dass der 1A -Zustand energetisch oberhalb des 1E -Zustands liegen muss [153]. Der optisch erlaubte Übergang von 1A nach 1E stellt die Nullphononenlinie des Infrarotübergangs bei 1042 nm dar.

Es bleibt noch anzumerken, dass im Molekülorbitalmodell das Orbital a'_1 sowohl im Grundzustand als auch im angeregten Zustand stets voll besetzt ist. Folglich genügt es, die elektronische Struktur ohne das a'_1 -Orbital zu betrachten. Alle Zustände des NV-Zentrums können mithilfe der Besetzung der verbliebenen Molekülorbitale in der Bandlücke beschrieben werden.

Feinstruktur der Triplettzustände bei Flüssigheliumtemperaturen

Sowohl der Grundzustand als auch der angeregte Zustand besitzen bei Flüssigheliumtemperaturen eine durch Spin-Spin-Wechselwirkung, Spin-Bahn-Wechselwirkung und auch lokale Verspannungen im Material bedingte Feinstruktur. Dabei sind lediglich Verspannungen senkrecht zur $\langle 111 \rangle$ -Symmetrieachse des NV-Zentrums relevant, da Verspannungen parallel zur Symmetrieachse alle Energieniveaus gleichermaßen verschieben und somit keine relative Verschiebung der Energieniveaus zur Folge haben. Der angeregte 3E -Zustand wird zunächst wie in Abbildung 2.5 dargestellt durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung in Richtung der Symmetrieachse des NV-Zentrums um eine äquidistante Aufspaltung λ in drei Energieniveaus E , E' sowie (A_1, A_2) aufgespalten, die alle zweifach entartet sind. Darüber hinaus werden die Energieniveaus zusätzlich durch die Spin-Spin-Wechselwirkung um ein Vielfaches von D_e weiter aufgespalten und die Entartung des (A_1, A_2) -Zustandes aufgehoben. Die Energieniveaus A_1 und A_2 werden dazu um Δ energetisch angehoben bzw. abgesenkt. Transversale Verspannungen heben schließlich die Entartung der Energieniveaus vollständig auf. Die sechs Energieniveaus gruppieren sich in zwei Orbitalzweige E_x und E_y , die jeweils drei Spinprojektionszustände S_x , S_y bzw. S_z enthalten. Der Aufspaltungsparameter δ zwischen den beiden Orbitalzweigen ist dabei ein geeignetes Maß für die Stärke der Transversalverspannung in der Nähe des NV-Zentrums [165, 166]. Für unverspannten Diamant liegt dieser Parameter im Bereich weniger Gigahertz. Mit zunehmender Verspannung nimmt δ jedoch zu, Werte bis über 20 GHz wurden gemessen. Es wurden sogar zwei Verspannungsparameter vorhergesagt und experimentell bestätigt, bei denen Niveaus des unteren Orbitalzweiges E_y kreuzen. Im oberen Orbitalzweig liegt eine derartige Kreuzung hingegen nicht vor [165, 166].

Die Aufspaltung des 3A -Grundzustands ist hauptsächlich durch die Spin-Spin-Wechselwirkung festgelegt. Die Spin-Bahn-Wechselwirkung ist hier nachgewiesenermaßen sehr schwach, die dadurch hervorgerufene Aufspaltung vernachlässigbar klein [167]. Die Spin-Spin-Wechselwirkung spaltet den 3A -Zustand in zwei Energieniveaus auf, das obere Energieniveau ist zweifach ent-

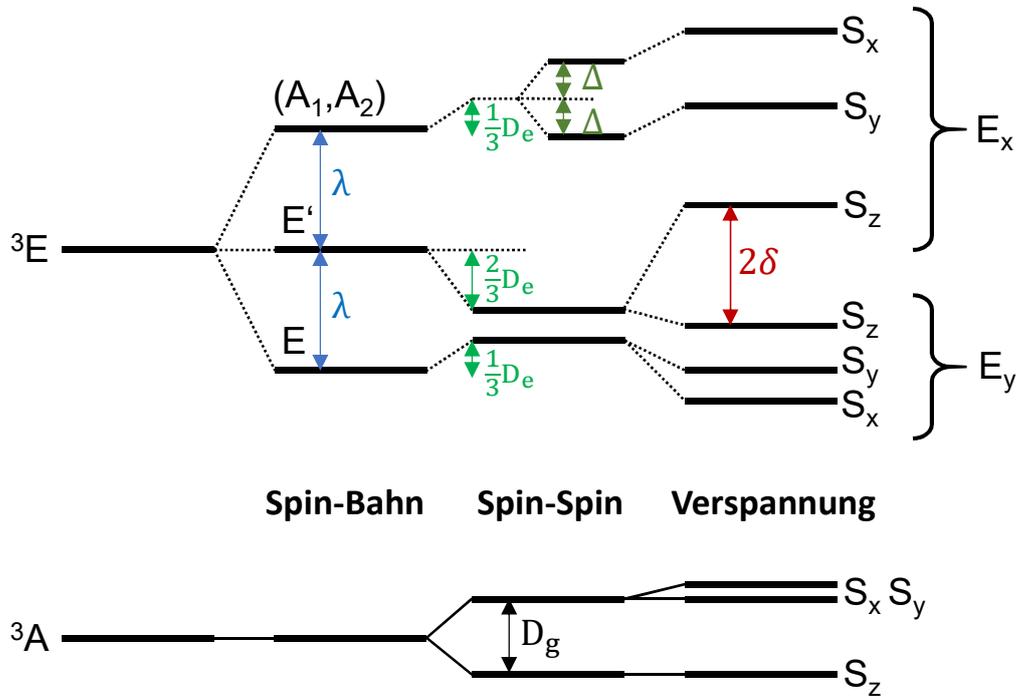


Abbildung 2.5: Feinstruktur bei Flüssigheliumtemperaturen. Der angeregte 3E -Zustand wird durch Spin-Bahn-Wechselwirkung, Spin-Spin-Wechselwirkung sowie transversale Verspannungen aufgespalten. Die vorliegenden sechs Energieniveaus mit den Spinprojektionen S_x , S_y bzw. S_z lassen sich in zwei Orbitalzweige E_x und E_y gruppieren. Für gering verspannten Diamant wurden folgende exemplarische Werte für die Aufspaltungsparameter gemessen: $\lambda = 5,3$ GHz, $D_e = 1,42$ GHz, $\Delta = 1,55$ GHz [165]. Der 3A -Grundzustand wird aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung um $D_g = 2,88$ GHz aufgespalten [49]. Die Spin-Bahn-Wechselwirkung ist hier vernachlässigbar klein. Transversale Verspannungen heben die Entartung vollständig auf, sodass im Grundzustand drei Energieniveaus mit den zugehörigen Spinprojektionen S_x , S_y bzw. S_z vorliegen. Der Abstand der einzelnen Energieniveaus ist in der Abbildung nicht maßstabsgetreu dargestellt.

artet. Die zugehörige Aufspaltung beträgt $D_g = 2,88$ GHz [49]. Erst eine zusätzlich vorliegende transversale Verspannung im Diamantgitter kann die Entartung aufheben. Im Grundzustand liegen somit drei Energieniveaus mit den drei Spinprojektionen S_x , S_y bzw. S_z vor.

Feinstruktur der Triplettzustände bei Raumtemperatur

Um beim angeregten 3E -Zustand einen Zusammenhang zwischen der Aufspaltung bei Flüssigheliumtemperaturen und Raumtemperatur herstellen zu können, muss berücksichtigt werden, dass zwischen den sechs Energieniveaus nicht-strahlende Übergänge unter der Beteiligung von Phononen stattfinden. Dadurch erfolgt stets eine energetische Mittlung zwischen einzelnen Energieniveaus. Bei Flüssigheliumtemperaturen ist diese Mittlung noch recht klein, daher erhält man hier sechs getrennte Energieniveaus. Bei Raumtemperatur führt die angesprochene Mittlung hingegen zu einer Aufspaltung, die nur noch den Einfluss der Spin-Spin-Wechselwirkung erkennen

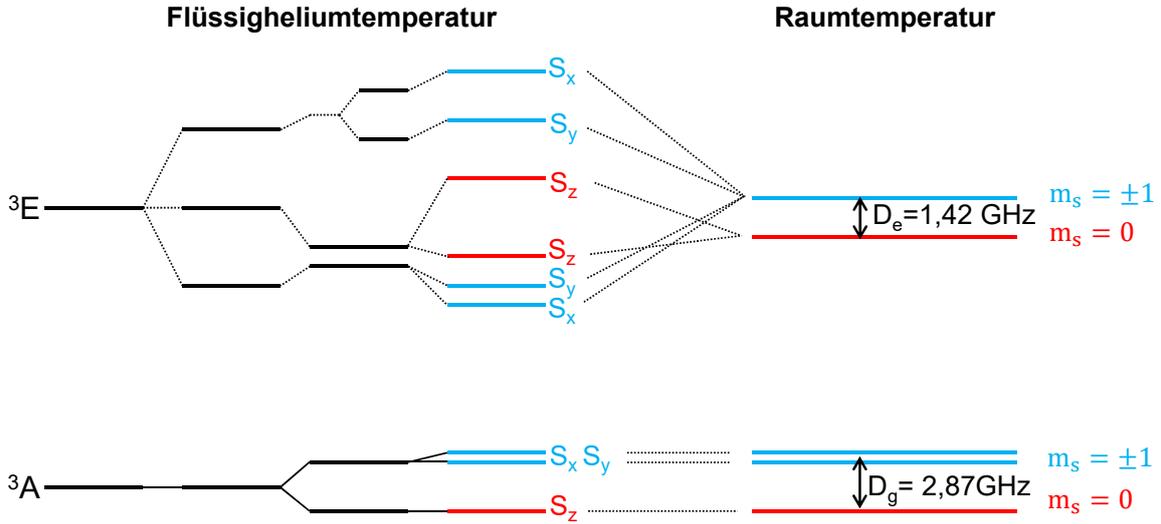


Abbildung 2.6: Entwicklung der Feinstruktur bei Zunahme der Temperatur. Vermittelt durch nicht-strahlende Übergänge unter der Beteiligung von Phononen findet zwischen Energieniveaus des angeregten 3E -Zustands eine mit steigender Temperatur zunehmend relevanter werdende energetische Mittellung statt. Bei Raumtemperatur liegen schließlich im angeregten Zustand statt der sechs nur noch drei Energieniveaus vor. Der angeregte Zustand spaltet stets um $D_e = 1,42 \text{ GHz}$ auf [168]. Der 3A -Grundzustand ist weiterhin durch die Spin-Spin-Wechselwirkung dominiert und wird dadurch um $D_g = 2,87 \text{ GHz}$ aufgespalten [51]. Der Abstand der einzelnen Energieniveaus ist in der Abbildung nicht maßstabsgetreu dargestellt.

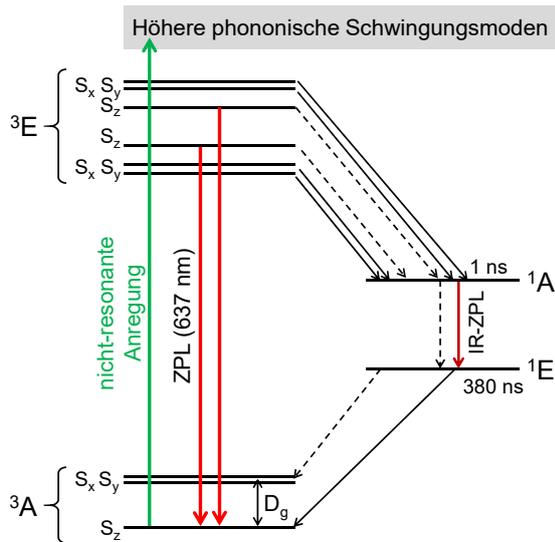
lässt, die Spin-Bahn-Wechselwirkung spielt keine Rolle mehr [56, 165]. Bei Raumtemperatur hat auch der Grad der Verspannung keinen Einfluss mehr auf die Feinstruktur, unabhängig vom verwendeten Diamanten liegen stets zwei Energieniveaus mit einer Aufspaltung von $D_e = 1,42 \text{ GHz}$ vor [168]. Das obere Niveau ist dabei zweifach entartet. Der Übergang von Flüssigheliumtemperaturen zu Raumtemperatur ist in Abbildung 2.6 skizziert.

Der Grundzustand behält beim Übergang zu Raumtemperatur seine Levelstruktur bei. Die Spin-Spin-Wechselwirkung dominiert weiterhin die Aufspaltung, die Entartung des obersten Energieniveaus wird weiterhin durch lokale transversale Verspannungen (falls vorhanden) aufgehoben. Die Aufspaltung aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkung ist mit $D_g = 2,87 \text{ GHz}$ leicht geringer als bei Flüssigheliumtemperaturen ($D_g = 2,88 \text{ GHz}$) [51]. Dem unteren Niveau ist die Spinprojektion $m_s = 0$ (entspricht S_z bei Flüssigheliumtemperaturen) zugeordnet und dem oberen Niveau die Spinprojektion $m_s = \pm 1$ (entspricht S_x bzw. S_y bei Flüssigheliumtemperaturen).

2.3.2 Spinpolarisation

Vom angeregten 3E -Zustand in den 3A -Grundzustand sind gemäß dem Energieniveauschema in Abbildung 2.5 für Flüssigheliumtemperaturen sechs mögliche spinerhaltende ZPL-Übergänge möglich. Zusätzlich können auch ZPL-Übergänge unter Wechsel der Spinprojektion stattfinden. Bei kontinuierlicher nicht-resonanter Anregung können jedoch selbst durch hochauflösende Pho-

a Flüssigheliumtemperatur



b Raumtemperatur

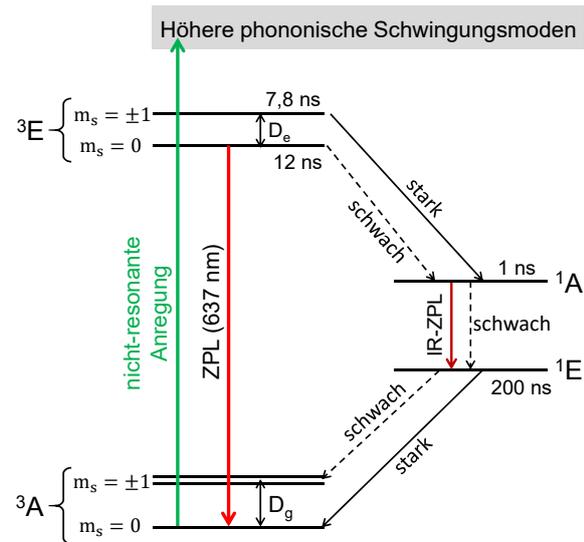


Abbildung 2.7: Modellhafte Darstellung der Übergänge beim NV-Zentrum. (a) Bei Flüssigheliumtemperaturen und kontinuierlicher Anregung sind in Photolumineszenzspektren zwei dominante ZPL-Übergänge bei 637 nm (rote Pfeile) zu beobachten. Zusätzlich kann ein weiterer Übergang zwischen den beiden Singulettzuständen beobachtet werden, der der Infrarot-ZPL bei 1042 nm (dunkelroter Pfeil) zugeschrieben werden kann. Die schwarzen Pfeile stellen nicht-strahlende Übergänge dar. Gestrichelte schwarze Pfeile symbolisieren Übergänge mit geringerer und die durchgezogenen schwarzen Pfeile Übergänge mit höherer Wahrscheinlichkeit. (b) Bei Raumtemperatur ist bei 637 nm lediglich ein ZPL-Übergang zu beobachten. Die angegebenen Lebensdauern für das Singulettssystem wurden von Robledo et al. [52] gemessen, die Lebensdauern für das Triplettssystem von Batalov et al. [165]. Der Abstand der einzelnen Energieniveaus ist nicht maßstabsgetreu.

tolumineszenzspektroskopie nur zwei dominante ZPL-Übergänge beobachtet werden. Ursache hierfür ist zum einen, dass Übergänge unter Wechsel der Spinprojektion sehr unwahrscheinlich sind und somit eine sehr geringe Intensität aufweisen [169, 170]. Des Weiteren ist hierfür das Phänomen der Spinpolarisation verantwortlich, das im Folgenden näher erläutert wird.

Strahlende und nicht-strahlende Übergänge

Bei nicht-resonanter Anregung des NV-Zentrums, etwa mit einem grünen Laser bei 532 nm, werden zunächst wie in Abbildung 2.7 modellhaft dargestellt höhere phononische Schwingungsmoden angeregt, die in den 3E -Zustand relaxieren. Neben den strahlenden ZPL-Übergängen in den 3A -Grundzustand erlaubt die Spin-Bahn-Wechselwirkung jedoch auch nicht-strahlende Übergänge in den 1A -Zustand. Ein solcher Wechsel zwischen Triplettssystem und Singulettssystem wird als *intersystem crossing* bezeichnet. Die Übergangsraten in das Singulettssystem hängen stark von der vorliegenden Spinprojektion ab. Übergänge aus den Energieniveaus des angeregten 3E -Zustands mit Spinprojektion S_x bzw. S_y in das Singulettssystem sind um vier Größenord-

nungen wahrscheinlicher als Übergänge aus Energieniveaus mit Spinprojektion S_z [169,171]. Die Population des 1A -Zustands zerfällt nach sehr kurzer Zeit in den 1E -Zustand, entweder strahlend unter Aussendung von Photonen die der infraroten ZPL bei 1042 nm zugeordnet werden oder auch nicht-strahlend. Der 1E -Zustand zerfällt wiederum weiter in den 3A -Grundzustand des Triplettsystems. Für alle Übergänge vom Singulettssystem zurück in den Grundzustand des Triplettsystems gilt, dass die Wahrscheinlichkeit eines Übergangs in die Spinprojektion S_z des Grundzustands des Triplettsystems etwa viermal bis sechsmal so groß ist als die eines Übergangs in die Spinprojektion S_x bzw. S_y [170,172]. Der Zerfall des angeregten 3E -Zustands über nicht-strahlende Kanäle durch das Singulettssystem ist folglich nicht spinerhaltend. Nach mehreren optischen Zyklen wird der Spin in der Spinprojektion S_z polarisiert. Auch bei Raumtemperatur findet analog dazu nach mehreren optischen Zyklen eine Spinpolarisation im $m_s = 0$ -Zustand statt. Dieser Vorgang kann leicht mithilfe von Abbildung 2.7 in Analogie zu den dargelegten Übergängen bei tiefen Temperaturen nachvollzogen werden. Experimentell konnte bereits gezeigt werden, dass nach wenigen Anregungs- und Zerfallszyklen Spinpolarisationen von mehr als 80% unter nicht-resonanter Anregung erreicht werden können [26,52].

Eine erste direkt ersichtliche Konsequenz der Spinpolarisation ist, dass nur optische Übergänge mit Spinprojektion $m_s = 0$ bzw. S_z zyklisch getrieben werden können. Des Weiteren sind von den sechs spinerhaltenden strahlenden ZPL-Übergängen bei tiefen Temperaturen nur die beiden zur Spinprojektion S_z gehörenden Übergänge in Photolumineszenzspektren dominant. Da die energetische Aufspaltung der beiden zur Spinprojektion S_z gehörenden Energieniveaus durch den Verspannungsparameter δ festgelegt ist, sind bei unverspanntem Diamant die beiden zu S_z gehörenden Energieniveaus entartet. In einem Spektrum lässt sich folglich sogar nur eine einzige Emissionslinie unter nicht-resonanter, kontinuierlicher Laseranregung beobachten. Bei verspanntem Diamant mit $\delta > 0$ hingegen wird die Entartung aufgehoben und man beobachtet bei hinreichend auflösender Photolumineszenzspektroskopie eine gespaltene Nullphononenlinie. Da die Stärke der Aufspaltung der betroffenen Energieniveaus direkt von dem transversalen Verspannungsparameter δ abhängt, kann die gemessene spektrale Aufspaltung etwa genutzt werden, um eine Aussage über den transversalen Verspannungsgrad des Diamanten zu treffen.

Den beiden beschriebenen Spektrallinien, die zu den ZPL-Übergängen aus den Spinprojektionen S_z der Orbitalzweige E_x bzw. E_y heraus in den 3A -Grundzustand gehören, können zwei Übergangsdipole zugeordnet werden [173]. Diese sind senkrecht zueinander in der (111)-Ebene ausgerichtet, die wiederum orthogonal zur $\langle 111 \rangle$ -Symmetrieachse des NV-Zentrums orientiert ist. Bei unverspanntem Diamant zeigen die beiden NV-Dipole in festgelegte kristallografische Richtungen und haben die gleiche Stärke. Die gemessenen Intensitäten sind jedoch davon abhängig, welcher Schnitt durch das Diamantgitter die Probenoberfläche bildet. So können etwa trotz gleicher Stärke dennoch unterschiedliche Dipolintensitäten mit einem vertikal über der Probenoberfläche positionierten Objektiv detektiert werden. Bei verspanntem Diamant hingegen sind die beiden Dipole üblicherweise in andere beliebige Richtungen innerhalb der (111)-Ebene verdreht und auch ihre relative Stärke zueinander kann sich unterscheiden [174]. Somit ergeben sich im Allgemeinen komplexere Polarisationsmuster als beispielsweise beim SiV-Zentrum.

Hierbei ist anzumerken, dass ein NV-Zentrum für diverse quantenphysikalische Anwendungen un-

unterscheidbare Photonen emittieren sollte. Bei verspanntem Diamant ist dabei die aufgespaltene ZPL ein Hindernis. Eine Idee zur Lösung des Problems ist, durch Polarisation des Anregungslichts genau einen der Übergangsdipole zu adressieren und somit alle emittierten Photonen in den zugehörigen Teil der aufgespaltenen ZPL zu konzentrieren [71]. Hierbei ist zu beachten, dass die beiden Dipole zwar in Emission senkrecht zueinander polarisiert sind, dies jedoch in Absorption nicht mehr vollständig der Fall ist [173]. Ursache hierfür kann unter anderem eine Mischung der Besetzung der Orbitalzweige E_x und E_y des angeregten Zustands vermittelt durch Phononen sein.

Lebensdauern

Da sich die Wahrscheinlichkeiten für die nicht-strahlenden Übergänge vom angeregten 3E -Zustand in den 1A -Zustand je nach Spinprojektion unterscheiden, werden für die einzelnen Energieniveaus des angeregten 3E -Zustands unterschiedliche Lebensdauern erwartet. Zunächst werden im Folgenden die Lebensdauern bei Raumtemperatur diskutiert. Nach heutigem Wissensstand beträgt die nicht-strahlende Übergangsrate für den angeregten $m_s = \pm 1$ -Zustand in den 1A -Zustand bis zu 50 % der strahlenden Zerfallsrate über die Nullphononenlinie, die für beide Spinprojektionen gleich groß ist [169]. Die nicht-strahlende Übergangsrate aus dem angeregten $m_s = 0$ -Zustand in das Singulettssystem ist dagegen sehr klein. Aufgrund der höheren Gesamtzerfallsrate weist der angeregte $m_s = \pm 1$ -Zustand folglich eine kleinere Lebensdauer als der $m_s = 0$ -Zustand auf. Die experimentell bestimmten Lebensdauern in Volumenmaterial variieren in der Literatur zwischen 12,0 ns und 13,7 ns für die Spinprojektion $m_s = 0$ und zwischen 7,3 ns und 7,8 ns für die Spinprojektion $m_s = \pm 1$ [53, 165, 175]. Aufgrund der geringeren lokalen optischen Zustandsdichte wurden in Nanodiamanten etwa doppelt so große Lebensdauern gemessen als in Volumenmaterialproben [176]. Konträr dazu ist die Lebensdauer des angeregten Zustands in Systemen mit höherer lokaler Zustandsdichte, wie etwa in geeigneten Resonatoren, verkürzt [79].

Robledo et al. [53] konnten nachweisen, dass sich die Lebensdauer des 1E -Zustands von 200 ns bei Raumtemperatur bei Abkühlen auf Flüssigheliumtemperaturen auf 380 ns verlängert. Die Lebensdauer des 1A -Zustands bewegt sich hingegen sowohl bei Raumtemperatur als auch bei tiefen Temperaturen in der Größenordnung ≤ 1 ns [175, 177]. Für die Spinprojektion S_z des Triplett-systems wurde ebenfalls die Lebensdauer bei Flüssigheliumtemperaturen gemessen, die Werte liegen zwischen 10 ns und 11 ns [175, 178]. Die Lebensdauer der Spinprojektion $m_s = 0$ bzw. S_z nimmt folglich mit sinkender Temperatur ab. Das Verhalten der Lebensdauern der $m_s = \pm 1$ -Zustände (S_x/S_y -Zustände) des Triplett-systems bei kleiner werdenden Temperaturen ist sehr komplex, man erwartet bei Flüssigheliumtemperaturen aufgrund theoretischer Überlegungen für jedes Unterlevel eine von der Symmetrie abhängige Lebensdauer [151].

Die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Lebensdauern wurden bei nicht-resonanter Anregung mit einem gepulsten Laser bei 532 nm in einem TCSPC-Prozess gemessen (Kapitel 5). Ein einzelner Laserpuls weist zwar nur eine Breite von 130 ps auf und ermöglicht daher nicht das mehrmalige Durchlaufen des optischen Zyklus, ist jedoch die Repetitionsrate hoch im Vergleich zur Kohärenzzeit, so wird dennoch eine hinreichende Spinpolarisation erreicht. Die gemessenen Lebensdauern sind somit stets von der Lebensdauer des $m_s = 0$ -Zustands (S_z -Zustands) dominiert.

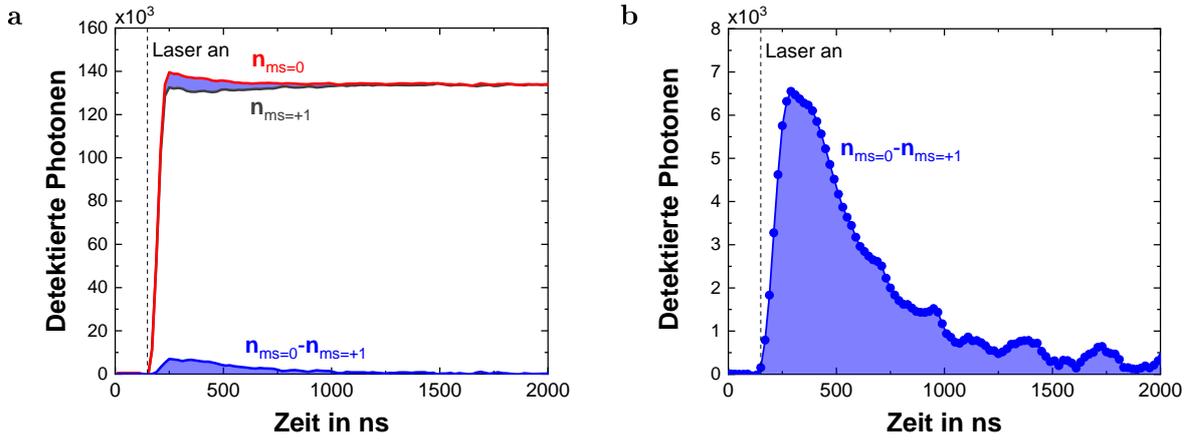


Abbildung 2.8: Zeitaufgelöste Photolumineszenzkurven eines NV-Ensembles bei Flüssigheliumtemperaturen. (a) Ein nicht-resonanter Laser bei 532 nm wird zum markierten Zeitpunkt $t_0 = 150$ ns zur optischen Spinauslese eingeschaltet und die Fluoreszenz nach erfolgter Präparation des Elektronenspins in der Spinprojektion $m_s = 0$ (rote Kurve) sowie $m_s = +1$ (schwarze Kurve) detektiert. Die Photonen werden in mehreren Durchläufen gezählt und aufaddiert. Die Differenz der beiden Fluoreszenzkurven ist als blaue Kurve dargestellt mit einem Zoom in (b).

2.3.3 Spinauslese und Spinmanipulation

Ist der Spinzustand eines NV-Zentrums unbekannt, so kann rein optisch durch Detektion der unter Laseranregung emittierten Photonen entschieden werden, welcher Spinzustand vorliegt. Möglich ist dies aufgrund des beschriebenen *intersystem crossing* zwischen Triplett- und Singulett-system. Wie bereits dargelegt wurde, ist die nicht-strahlende Übergangsrate in den 1A -Zustand aus dem angeregten 3E -Zustand mit Spinprojektion $m_s = 0$ sehr klein gegenüber der Übergangsrate aus dem angeregten 3E -Zustand mit Spinprojektion $m_s = \pm 1$. Die Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* hängt folglich vom konkret vorliegenden Spinzustand ab. Während der sehr langen Lebensdauer des 1E -Zustands von 200 ns bei Raumtemperatur bzw. 380 ns bei Flüssigheliumtemperaturen kann das NV-Zentrum keine weiteren optischen Zyklen durchlaufen und folglich keine Photonen emittieren. Die mittlere Anzahl der in einem bestimmten Zeitfenster detektierten Photonen ist folglich bei Vorliegen der Spinprojektion $m_s = \pm 1$ geringer als bei Spinprojektion $m_s = 0$. Je größer dabei die Differenz der in einem bestimmten Zeitfenster jeweils detektierten Photonenanzahl ist, desto zuverlässiger können die Spinprojektionen unterschieden werden. Die Fluoreszenz wird aber selbst bei Präparation im $m_s = \pm 1$ -Zustand aufgrund der weiterhin stattfindenden ZPL-Übergänge nicht identisch Null. Aus einer Detektion von Photonen kann folglich nicht bereits auf den $m_s = 0$ -Zustand geschlossen werden.

In Abbildung 2.8a sind die zeitaufgelösten Photolumineszenzkurven eines NV-Ensembles dargestellt. Bei Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand steigt die Fluoreszenz nach Einschalten des Lasers zunächst steil an und relaxiert nach einiger Zeit auf ein stabiles Niveau unterhalb des Maximums. Grund für die beobachtete Abnahme der Fluoreszenz ist, dass unter Lasereinstrahlung auch bei ursprünglicher Präparation im $m_s = 0$ -Zustand vor allem bedingt durch ZPL-Übergänge mit einem Wechsel der Spinprojektion die Wahrscheinlichkeit für ein *in-*

tersystem crossing mit wachsender Anzahl an durchlaufenen optischen Zyklen ansteigt. Findet einer solcher Übergang statt, so bleibt das NV-Zentrum für die Lebensdauer des 1E -Zustands dunkel. Die Population im langlebigen Singulettzustand erreicht nach einigen optischen Zyklen einen stabilen Wert, die zeitaufgelöst detektierte Photonenzahl bleibt folglich nach einer hinreichend langen Dauer der Lasereinstrahlung konstant.

Bei Präparation der NV-Zentren im $m_s = \pm 1$ -Zustand steigt die Fluoreszenz nach Einschalten des Lasers zunächst ebenfalls steil an. Da die Wahrscheinlichkeit für den Übergang vom angeregten 3E -Zustand in das Singulettssystem jedoch für den $m_s = \pm 1$ -Zustand deutlich größer ist als für den $m_s = 0$ -Zustand, ist die beobachtete Fluoreszenz zunächst geringer. Nach einer Zeitspanne in der Größenordnung von ein bis zwei Lebensdauern des langlebigen 1E -Zustand erreicht die zeitaufgelöst detektierte Photonenzahl ebenfalls das gleiche stabile Niveau wie bei Präparation im $m_s = 0$ -Zustand. Grund dafür ist, dass der 1E -Zustand präferiert in den $m_s = 0$ -Grundzustand des Triplettsystems relaxiert und somit nach einigen optischen Zyklen auch bei ursprünglicher Präparation im $m_s = \pm 1$ -Zustand zu der gewohnten Spinpolarisation im $m_s = 0$ -Zustand führt. Der zeitaufgelöste Kontrast ergibt sich schließlich als Differenz der beiden Photolumineszenzkurven (Abbildung 2.8b). Obwohl nach diesen Ausführungen der Bezeichner dunklerer Zustand zutreffender wäre, wird der $m_s = \pm 1$ -Zustand in der Literatur als der dunkle Zustand (*dark state*) und der $m_s = 0$ -Zustand als der helle Zustand (*bright state*) bezeichnet.

ODMR-Spektroskopie

Die Aufspaltung des Grundzustands eines NV-Zentrums liegt mit $D_g = 2,87$ GHz im Bereich gängiger Mikrowellenquellen, darüber hinaus sind magnetische Dipolübergänge mit $\Delta m_s = \pm 1$ erlaubt. Folglich kann der Übergang zwischen den beiden Energieniveaus des Grundzustands mit einem geeigneten Mikrowellenfeld getrieben werden. Das Mikrowellenfeld muss dazu eine Komponente senkrecht zur $\langle 111 \rangle$ -Symmetrieachse der NV-Zentren aufweisen, da die NV-Dipole in der orthogonalen (111) -Ebene verortet sind. Ferner muss die Mikrowellenfrequenz auf den Übergang zwischen den Energieniveaus im Grundzustand exakt abgestimmt sein. Zum Auffinden dieser Resonanzfrequenz eignet sich das Verfahren der optisch detektierten magnetischen Resonanz (*optically-detected magnetic resonance*, ODMR) bei kontinuierlicher Laseranregung und kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung [49, 51, 179]. Bei einer ODMR-Messung an NV-Zentren wird typischerweise ein nicht-resonanter Laser sowie eine durchstimmbare Mikrowellenquelle eingesetzt. Ist die Mikrowellenstrahlung außer Resonanz des Grundzustandsübergangs, so hat diese keinen Effekt auf das NV-Zentrum. Die Laserstrahlung polarisiert den Elektronenspin wie beschrieben im hellen $m_s = 0$ -Zustand, das NV-Zentrum zeigt folglich maximale Fluoreszenz. Ist das Mikrowellenfeld hingegen auf den Übergang von $m_s = 0$ nach $m_s = \pm 1$ abgestimmt, so findet ein Populationstransfer in den dunklen $m_s = \pm 1$ -Zustand statt. Da das NV-Zentrum im $m_s = \pm 1$ -Zustand aufgrund des *intersystem crossing* im Mittel weniger Photonen emittiert als im $m_s = 0$ -Zustand, nimmt die Intensität der detektierten Photolumineszenz ab.

In Abbildung 2.9a ist ein typisches ODMR-Spektrum eines Ensembles von NV-Zentren dargestellt. Der Intensitätsabfall im Bereich der Resonanzfrequenz ist deutlich zu erkennen. Die Lini-

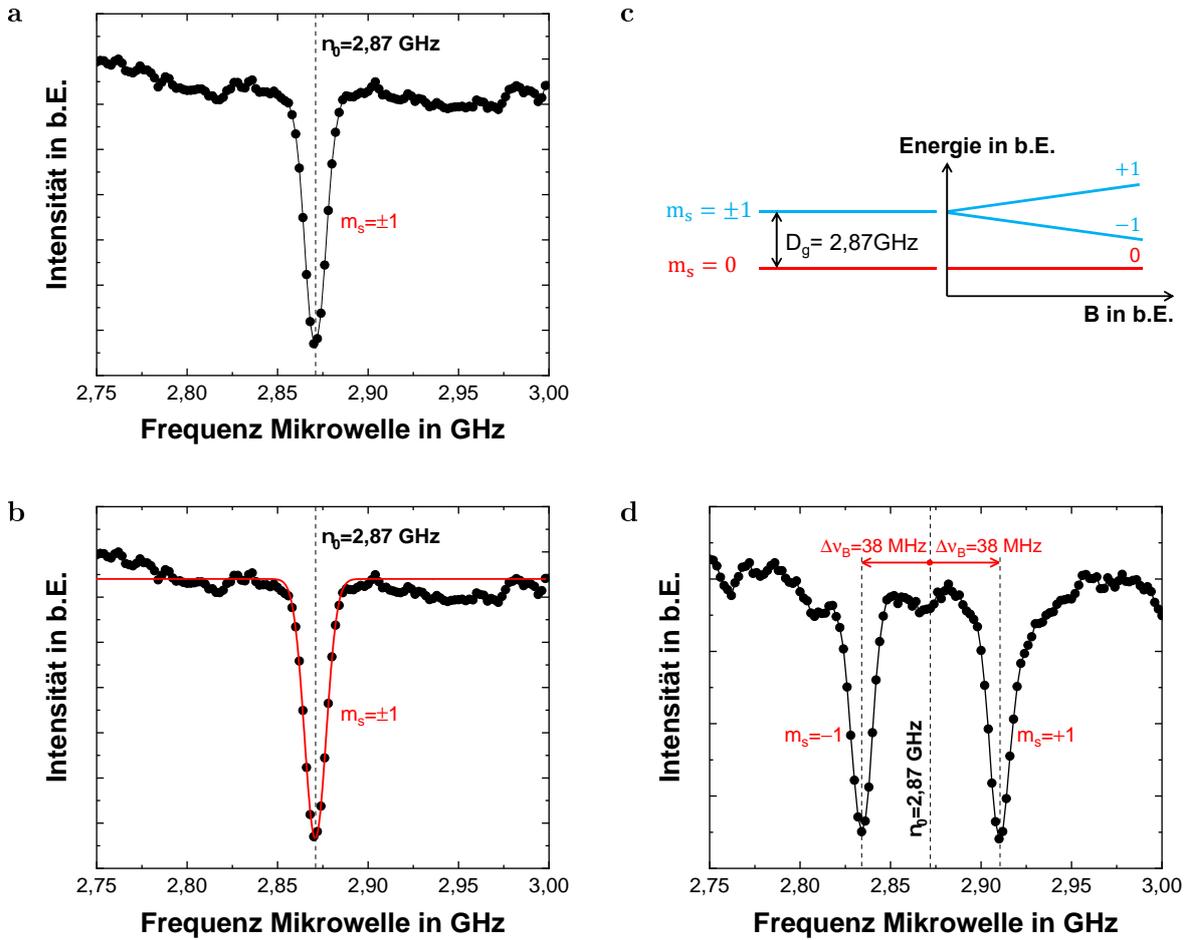


Abbildung 2.9: ODMR-Spektroskopie eines NV-Ensembles bei Raumtemperatur. (a) Ohne externes Magnetfeld liegt ein Einbruch bei 2,87 GHz vor, der der Aufspaltung um $D_g = 2,87$ GHz des Grundzustands entspricht. (b) Die Linienform des Einbruchs ist hier eher gaußförmig als lorentzförmig, Laserleistung und Mikrowellenleistung waren entsprechend klein gewählt. (c) Bei Anlegen eines externen Magnetfelds spalten die Energieniveaus des $m_s = \pm 1$ -Zustands linear auf, der $m_s = 0$ -Zustand bleibt vom Magnetfeld unberührt. Der Abstand der einzelnen Energieniveaus ist nicht maßstabsgetreu dargestellt, der Einfluss einer transversalen Verspannung nicht berücksichtigt. (d) Bei einem Magnetfeld der Stärke $B = 2$ mT liegen im Spektrum zwei Einbrüche vor, die jeweils um hier 38 MHz verschoben sind. Die einzelnen Einbrüche spalten nicht weiter auf, da ein möglicher Einfluss der Verspannung deutlich geringer ist als die Linienbreite und darüber hinaus alle vier möglichen Dipolorientierungen des NV-Zentrums aufgrund der (100)-Polierung des Diamanten den gleichen relativen Winkel zum Magnetfeld einschließen.

enbreite des Übergangs vom $m_s = 0$ in den $m_s = \pm 1$ -Grundzustand wird durch die unmittelbare Umgebung der NV-Zentren beeinflusst. CVD-Diamant weist üblicherweise eine Konzentration von etwa 1% des Kohlenstoffisotops ^{13}C auf. Im Unterschied zum herkömmlichen Isotop ^{12}C besitzen ^{13}C -Atome einen Kernspin von $I = 1/2$. Somit ist das NV-Zentrum in der Regel in den verwendeten Diamantproben von einem Kernspinbad umgeben, das auf das Farbzentrum im Mittel wie ein externes, sich ständig änderndes Magnetfeld wirkt. Asymptotisch für viele stören-

de Kernspins ergibt sich ein gaußförmiger Einbruch im ODMR-Spektrum [180]. Zusätzlich wird die Linienbreite sowohl durch das für die Spinmanipulation benötigte Mikrowellenfeld als auch durch das kontinuierlich eingestrahlte Laserlicht beeinflusst (siehe auch Kapitel 9). Aufgrund der Leistungsverbreiterung ergibt sich bei hinreichend großen Mikrowellen- und Laserleistungen ein lorentzförmiger Einbruch im ODMR-Spektrum. Um eine möglichst schmale Linie zu erhalten, sollte die Leistung des Mikrowellenfeldes sowie des Lasers möglichst klein gewählt sowie zusätzlich möglichst isotopenreiner Diamant als Ausgangsmaterial gewählt werden.

Aufspaltung der Feinstruktur in einem externen Magnetfeld

Soll ein NV-Zentrum nach erfolgter Spininitialisierung gezielt entweder im $m_s = +1$ -Zustand oder im $m_s = -1$ -Zustand präpariert werden, so kann dies nur gelingen, wenn die Entartung dieser Energieniveaus im Grundzustand aufgehoben wird. Da die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Diamantproben keinesfalls unverspannt sind, ist die Entartung der betroffenen Grundzustandsniveaus zwar prinzipiell bereits aufgehoben, die daraus resultierende Aufspaltung ist jedoch viel zu klein im Vergleich zur vorliegenden Linienverbreiterung des Mikrowellenübergangs (Abbildung 2.9a). Eine trennscharfe Adressierung etwa des Übergangs vom $m_s = 0$ in den $m_s = +1$ -Grundzustand durch ein Mikrowellenfeld ist folglich noch nicht möglich. Soll eine größere Aufspaltung der beiden Grundzustände $m_s = +1$ und $m_s = -1$ erzielt werden, so kann dies sowohl bei Flüssigheliumtemperaturen als auch bei Raumtemperatur am effektivsten durch eine Zeeman-Aufspaltung bei Anlegen eines externen Magnetfelds gelingen.

Bei Vernachlässigung der für unsere Betrachtungen nicht relevanten Hyperfeinstruktur kann die Energieaufspaltung ΔE des 3A -Grundzustands des NV-Zentrums wie folgt dargestellt werden:

$$\Delta E = D_g \cdot S_z^2 + g\mu_B \cdot \vec{B} \cdot \vec{S} + V_T \cdot (S_x^2 - S_y^2) . \quad (2.1)$$

Hierbei ist $D_g = 2,87$ GHz die feldfreie Aufspaltung der Grundzustände $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$, V_T der Aufspaltungsparameter aufgrund von transversalen Verspannungen, $g = 2,003$ der Elektronenspin g-Faktor [181], μ_B das Bohrsche Magneton, \vec{B} die Flussdichte des externen Magnetfelds sowie \vec{S} der NV-Elektronenspin mit den drei Spinprojektionen S_x , S_y und S_z mit Betrag $S = 1$. Dabei stellt $\Delta E_B = g\mu_B \cdot \vec{B} \cdot \vec{S}$ den Einfluss des Magnetfelds und $\Delta E_{V_T} = V_T \cdot (S_x^2 - S_y^2)$ den Einfluss der transversalen Verspannung auf die Aufspaltung der Grundzustandsniveaus dar [182]. Die Magnetfeldaufspaltung ΔE_B hängt linear von der Stärke des Magnetfelds am Ort des NV-Zentrums ab. Ferner ist die Aufspaltung von der relativen Orientierung des Magnetfelds zur Symmetrieachse des NV-Zentrums abhängig. Dies hat zur Folge, dass im ODMR-Spektrum nach Anlegen eines externen Magnetfelds üblicherweise nicht nur zwei, sondern acht Einbrüche aufgrund der vier möglichen Orientierungen des NV-Zentrums entlang der $\langle 111 \rangle$ -Achse des Diamantgitters zu beobachten sind. Bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Diamantproben bildet die (001)-Ebene stets die Oberfläche, das angelegte Magnetfeld ist senkrecht zur Probenoberfläche orientiert. Somit weisen in den untersuchten Proben alle vier möglichen NV-Dipole mit $\alpha = 54,7^\circ$ den gleichen relativen Winkel zum Magnetfeld auf. In dem aufgenommenen ODMR-Spektrum in Abbildung 2.9d sind folglich lediglich zwei Linien zu beobachten, die den Spinprojektionen

$m_s = -1$ bzw. $m_s = +1$ zugeordnet werden können.

Mithilfe des Winkels α zwischen Symmetrieachse des NV-Zentrums und Magnetfeldkomponente senkrecht zur NV-Symmetrieachse kann die durch das angelegte Magnetfeld erzielte energetische Aufspaltung ΔE_B wie folgt dargestellt werden:

$$\Delta E_B = g\mu_B \cdot \vec{B} \cdot \vec{S} = g\mu_B B \cos(\alpha) . \quad (2.2)$$

Für die Frequenzverschiebung der Linie im ODMR-Spektrum gilt somit:

$$\Delta\nu_B = \frac{g\mu_B}{h} \cdot B \cdot \cos(\alpha) = 28 \frac{\text{GHz}}{\text{T}} \cdot B \cdot \cos(\alpha) . \quad (2.3)$$

Um die Aufspaltung in Abbildung 2.9d zu erhalten, wurde ein Magnetfeld der Flussdichte $B = 2 \text{ mT}$ angelegt bei einem relativen Winkel von $\alpha = 54,7^\circ$. Nach Gleichung (2.3) ist eine Verschiebung der Resonanzfrequenzen im ODMR-Spektrum um 33 MHz zu erwarten, in guter Übereinstimmung mit dem aus dem ODMR-Spektrum deduzierten Wert von 38 MHz.

Die Magnetfeldaufspaltung des angeregten Zustands erfolgt bei Raumtemperatur analog zum Grundzustand. In Gleichung (2.1) müssen lediglich die entsprechenden Parameter D_e und V_{T_e} eingesetzt werden. Für weitere Informationen siehe etwa [56, 176, 179]. Bei der Aufspaltung des angeregten Zustands ist zu beachten, dass bei einer Flussdichte von etwa 50 mT, senkrecht zur Symmetrieachse und am Ort des NV-Zentrums gemessen, eine Kreuzung der Energieniveaus $m_s = 0$ und $m_s = -1$ stattfindet [54]. Dadurch liegt unter optischer Anregung eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für einen Spin-Flip vor. Folglich sollte sichergestellt werden, dass zum Aufspalten des Grundzustands stets davon abweichende Flussdichten, wie etwa die im Rahmen dieser Arbeit angelegten $B = 2 \text{ mT}$, verwendet werden. Systematische Untersuchungen zur Magnetfeldaufspaltung des angeregten Zustands bei tiefen Temperaturen stehen noch aus.

2.3.4 Kohärente Oszillationen durch Rabi-Sequenzen

Wie im Abschnitt zur ODMR-Spektroskopie bereits erläutert wurde, kann nach Initialisierung des NV-Elektronenspins im $m_s = 0$ -Zustand das $m_s = +1$ -Niveau des Grundzustands etwa durch Anlegen eines geeigneten kontinuierlichen Mikrowellenfeldes besetzt werden. Ein Nachteil der kontinuierlichen Mikrowellenmanipulation ist jedoch, dass die Populierung des $m_s = +1$ -Zustands ineffektiv erfolgt. Durch das Mikrowellenfeld findet sowohl eine Spinrotation von $m_s = 0$ in $m_s = +1$ als auch gleichzeitig eine Spinrotation von $m_s = +1$ zurück in $m_s = 0$ statt. Die Populationen der Grundzustandsniveaus oszillieren, nach kurzer Zeit stellt sich ein Besetzungsgleichgewicht ein. Es ist somit selbst in einem idealen System unmöglich, die gesamte Population mittels kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung vom $m_s = 0$ in den $m_s = +1$ -Zustand zu überführen. Dies kann jedoch gelingen, wenn zur Spinmanipulation geeignete Mikrowellenpulse eingesetzt werden. Diese müssen neben einer auf den Übergang abgestimmten Frequenz auch die richtige Pulslänge aufweisen. Die Standardsequenz zur Darstellung der Populationsdynamik in Abhängigkeit der Pulslänge der eingestrahlten Mikrowellenpulse ist die Rabi-Sequenz. Kohä-

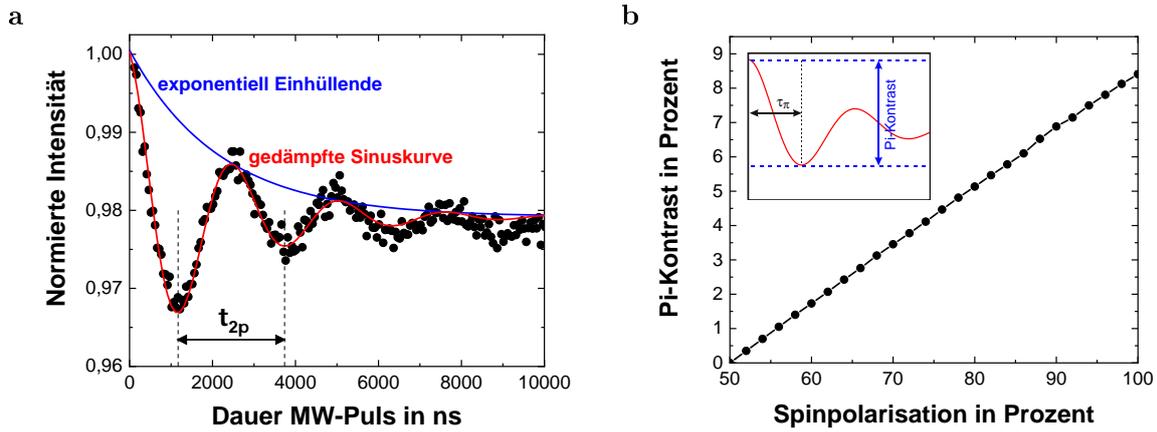


Abbildung 2.10: Rabi-Oszillationen. (a) Für ein NV-Ensemble bei Flüssigheliumtemperaturen wurde die Dauer des Mikrowellenpulses variiert, die Anzahl der detektierten Photonen in mehreren Durchläufen gezählt und aufaddiert und mit der Referenzfluoreszenz ohne Spinmanipulation normiert. Die Spininitialisierung und Auslese erfolgte mit einem nicht-resonanten Laser bei 532 nm. Die Fluoreszenz oszilliert periodisch, ein Pi-Puls hat die Länge $\tau_\pi = 1300$ ns. Die Fluoreszenzkurve kann mit einer gedämpften Sinusfunktion mit Periode $\tau_{2\pi} = 2600$ ns angepasst werden (rote Kurve), die Dämpfung erfolgt exponentiell mit Zeitkonstante $T_1 = 2,1$ μ s (blaue Kurve). Der Pi-Kontrast beträgt hier 3,3 %. (b) Pi-Kontrast eines NV-Ensembles in Abhängigkeit der Spinpolarisation. Für Details zur erfolgten Modellierung mithilfe eines Ratengleichungsmodells siehe Kapitel 9.

rente Rabi-Oszillationen durch Mikrowellenmanipulation konnten für ein einzelnes NV-Zentrum erstmals 2004 durch Jelezko et al. [50] demonstriert werden.

Eine Rabi-Sequenz besteht aus drei Teilen. Im ersten Teil der Sequenz wird das NV-Zentrum durch einen Anregungspuls eines nicht-resonanten Lasers im $m_s = 0$ -Zustand des Grundzustands initialisiert. Im Anschluss daran erfolgt ein auf die Resonanzfrequenz des Übergangs zwischen den Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ und $m_s = +1$ abgestimmter Mikrowellenpuls und zur Spinauslese im dritten Teil der Sequenz ein weiterer nicht-resonanter Laserpuls kurzer Dauer. Die Länge des Mikrowellenpulses wird variiert und die Fluoreszenz während des Laserpulses zur optischen Spinauslese jeweils detektiert. In Abbildung 2.10a ist eine exemplarische Fluoreszenzkurve einer Rabi-Sequenz dargestellt. Die normierte Fluoreszenz oszilliert periodisch in Abhängigkeit der Dauer des Mikrowellenpulses. Dies lässt auf eine periodisch oszillierende Besetzung der Energieniveaus $m_s = 0$ und $m_s = +1$ des Grundzustands schließen. Des Weiteren lässt sich erkennen, dass die Fluoreszenz bei ganz bestimmten Pulslängen Minima annimmt. Dies bedeutet, dass bei diesen Pulsdauern der $m_s = +1$ -Zustand (dunkler Zustand) am effektivsten populiert wird. Genau in der Mitte zweier Minima befindet sich ein Maximum. Ist die Fluoreszenz maximal, so wird der $m_s = 0$ -Zustand (heller Zustand) effektiv besetzt. Ein Mikrowellenpuls mit einer Pulslänge, die dem zeitlichen Abstand zwischen Minimumstelle und Maximumstelle der Kurve entspricht, ist ein sogenannter Pi-Puls. Dieser rotiert die Population am effektivsten von $m_s = 0$ nach $m_s = +1$ oder umgekehrt. Auf der Blochkugel würde dies einer Drehung des Spins von

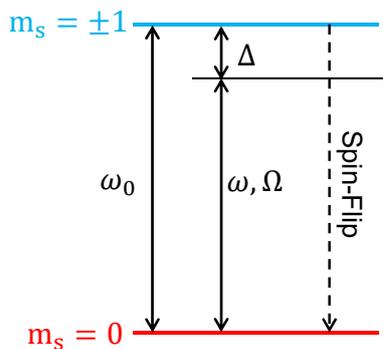


Abbildung 2.11: Modell des Grundzustands des NV-Zentrums als Zwei-Niveau-System. Das zur Spinmanipulation eingesetzte Mikrowellenfeld wird als kohärentes elektromagnetisches Feld mit Trägerfrequenz ω und Rabi-Frequenz Ω modelliert. In realen Systemen kann die Frequenz des Mikrowellenfeldes eine Verstimmung $\Delta = \omega_0 - \omega$ aufweisen, ferner sind Spin-Flips möglich.

einem Pol zum anderen Pol entsprechen. Der Elektronenspin würde dabei einen Halbkreis auf der Blochkugel überstreichen, daher der Bezeichner Pi-Puls.

In Abbildung 2.10a ist des Weiteren zu beobachten, dass die Rabi-Kurve einen Pi-Kontrast von 3,3% aufweist. Hierbei ist anzumerken, dass selbst bei einer optimalen Initialisierung des NV-Elektronenspins im $m_s = 0$ -Zustand sowie einer anschließenden optimalen Populierung des $m_s = \pm 1$ -Zustands durch einen Mikrowellen-Pi-Puls die normierte Intensität der Rabi-Kurve keinen Pi-Kontrast von 100% aufweisen würde. In Abbildung 2.10b sind für ein im Rahmen dieser Arbeit untersuchtes NV-Ensemble der zu erwartende Pi-Kontrast in Abhängigkeit der Spinpolarisation aufgetragen. Bei einer 50%-igen Spinpolarisation ist der Pi-Kontrast erwartungsgemäß Null und steigt auf einen Wert von hier 8,5% für eine optimale Spinpolarisation an. Als weitere Gründe für eine Abweichung von üblicherweise erreichten Pi-Kontrasten von 20% [183] bis hin zu 30% [54] sind primär die Oberflächennähe der untersuchten NV-Zentren sowie die Tatsache, dass es sich um ein Ensemble von Emittlern handelt, anzuführen (siehe auch Kapitel 9).

Im Folgenden soll anhand eines theoretischen Modells bestätigt werden, dass die Oszillationen der Populationen in Abhängigkeit der Pulslänge sinusförmig verlaufen und dass die Amplitude der Fluoreszenzoszillationen exponentiell abnimmt. In diesem Zusammenhang wird auch auf den Begriff der Kohärenzzeit und das Phänomen des *beatings* eingegangen.

Lösungen der Schrödingergleichung für ein Zwei-Niveau-System

Der Grundzustand eines NV-Zentrums wird im Folgenden modellhaft als Zwei-Niveau-System angenommen mit einem unteren Energieniveau $m_s = 0$ mit Energie Null sowie einem oberen Energieniveau $m_s = +1$ (Abbildung 2.11). Die Energiedifferenz der beiden Niveaus betrage $\hbar \cdot \omega_0$. Das zur Spinmanipulation eingesetzte Mikrowellenfeld wird als kohärentes elektromagnetisches Feld mit Trägerfrequenz ω und Rabi-Frequenz Ω modelliert. Zwischen Frequenz des Mikrowellenfeldes und Frequenz des Übergangs kann eine Verstimmung $\Delta = \omega_0 - \omega$ vorliegen.

Die zeitabhängige Schrödingergleichung des Zwei-Niveau-Systems lautet allgemein:

$$\hat{H}\psi(r, t) = i\hbar \frac{d\psi(r, t)}{dt} \quad (2.4)$$

mit dem Hamiltonoperator \hat{H} und der Wellenfunktion $\psi(r, t)$. Der Hamiltonoperator $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{MW}}$ setzt sich zusammen aus dem Energieoperator \hat{H}_0 des ungestörten Systems sowie dem Operator \hat{H}_{MW} , der die Wechselwirkung des Zwei-Niveau-Systems mit dem elektromagnetischen Feld beschreibt. Die allgemeine Lösung lautet $\psi(r, t) = c_1(t) \psi_1(r, t) + c_2(t) \psi_2(r, t)$.

Im Folgenden wird sich auf die Analyse der Lösungen der Schrödingergleichung (2.4) für das vorliegende Zwei-Niveau-System beschränkt, das konkrete Lösungsverfahren kann etwa in der Literatur [184] nachgelesen werden. Ist zum Zeitpunkt $t = 0$ ohne Einschränkung nur das untere Energieniveau besetzt und geht man darüber hinaus zunächst im einfachsten Falle von einer Verstimmung von $\Delta = 0$ aus, so ergeben sich folgende Lösungen [184]:

$$c_1(t) = \cos\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \quad (2.5)$$

$$c_2(t) = -i \cdot \sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) . \quad (2.6)$$

Für die dazugehörigen Besetzungswahrscheinlichkeiten der beiden Energieniveaus gilt somit:

$$|c_1|^2(t) = \cos^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) = \frac{1}{2}(1 + \cos(\Omega t)) \quad (2.7)$$

$$|c_2|^2(t) = \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) = \frac{1}{2}(1 - \cos(\Omega t)) . \quad (2.8)$$

In Abbildung 2.12a sind exemplarisch die Besetzungen der beiden Niveaus in Abhängigkeit der Dauer des Mikrowellenpulses aufgetragen. Da der Verlauf der Fluoreszenz beim optischen Auslesen des Spinzustands dem Verlauf der Besetzungen der Grundzustandsniveaus folgt, ist auch ein sinusförmiger Verlauf der Fluoreszenzkurve in Abhängigkeit der Länge des Mikrowellenpulses in einer Rabi-Kurve zu erwarten (Abbildung 2.10a).

Solange das Mikrowellenfeld mit dem Zwei-Niveau-System, also hier dem Grundzustand des NV-Zentrums, wechselwirkt, wird der Elektronenspin um die x -Achse auf der Blochkugel gedreht. Die Rabi-Frequenz entspricht dabei der Oszillationsfrequenz dieser Drehungen mit Umlaufzeit $T_{2\pi}$. Für die Rabi-Frequenz gilt folglich:

$$\Omega = \frac{2\pi}{T_{2\pi}} . \quad (2.9)$$

Die Rabi-Frequenz beschreibt somit anschaulich gesprochen, wie schnell bzw. wie stark der Elektronenspin durch das elektromagnetische Feld gedreht wird und ist somit ein geeignetes Maß für die Stärke der vorliegenden Wechselwirkung zwischen NV-Zentrum und Mikrowellenfeld. Für den Zusammenhang zwischen der Rabi-Frequenz Ω und der Stärke des Mikrowellenfelds B_{\perp} senkrecht

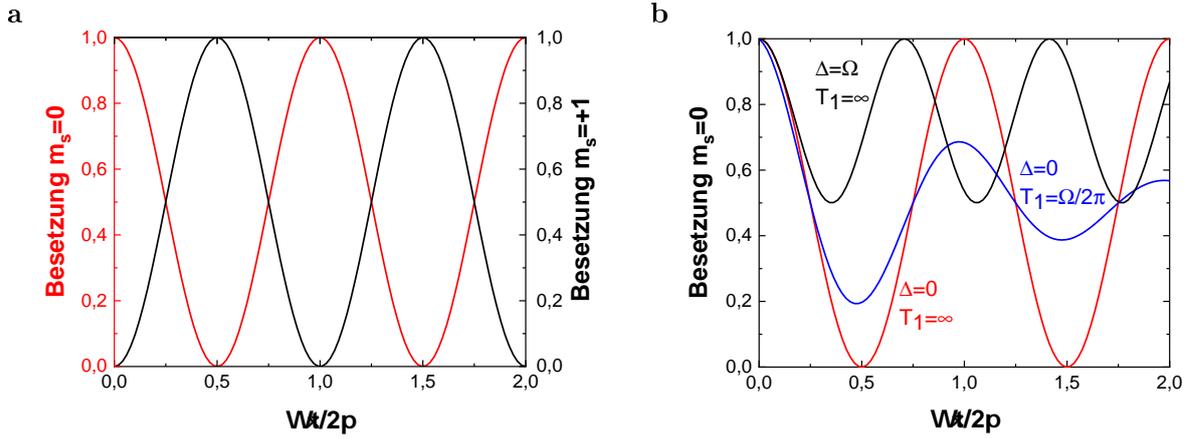


Abbildung 2.12: Besetzungsänderungen eines Zwei-Niveau-Systems. (a) Besetzungswahrscheinlichkeiten für die Spinprojektionen $m_s = 0$ (rote Kurve) und $m_s = +1$ (schwarze Kurve) in Abhängigkeit der Dauer des Mikrowellenpulses. Die Besetzungen oszillieren sinusförmig, die Summe der Besetzungswahrscheinlichkeiten ist 1. (b) Einfluss einer Verstimmung bzw. Besetzungsänderung (Spin-Flip) des oberen Energieniveaus. Bei einer Verstimmung von $\Delta = 1 \cdot \Omega$ (schwarze Kurve) wird die Amplitude der Oszillationen der Besetzungswahrscheinlichkeit geringer und die Periode (generalisierte Rabi-Frequenz) kürzer. Sind Spin-Flips erlaubt (blaue Kurve), so werden die Oszillationen exponentiell mit Zeitkonstante T_1 gedämpft.

zur NV-Symmetrieachse gilt:

$$\Omega = \gamma_B \cdot B_{\perp} = 28 \frac{\text{MHz}}{\text{T}} \cdot B_{\perp} . \quad (2.10)$$

Der Parameter $\gamma_B = 28 \frac{\text{MHz}}{\text{T}}$ wird als gyromagnetisches Verhältnis bezeichnet.

Kohärenzzeit und *beating*

Um auch die exponentielle Dämpfung der sinusförmigen Rabi-Kurven erklären zu können, müssen weitere Parameter in das bisher entwickelte Modell integriert werden. Ist bei einem NV-Zentrum der Spin im Zustand $m_s = +1$ präpariert, so treten im Laufe der Zeit Dekohärenzeffekte auf. So kann etwa der Spin selbstständig, d. h. ohne Einwirkung des äußeren Mikrowellenfelds zurück in den $m_s = 0$ -Zustand rotieren und so die Kohärenz zerstören. Des Weiteren sorgt, wie bereits in Abschnitt 2.3.3 diskutiert wurde, unter anderem das Kernspinbad, das ein NV-Zentrum in nicht isotopenreinem Diamant umgibt, für eine Überlagerung von Mikrowellenfeld und Kernspinbad am Ort des NV-Zentrums. Die Konsequenz kann magnetisches Rauschen am Ort des Elektronenspins sein, in Folge dessen sich die Populationen ändern und auch Dephasierung auftreten kann. Zusätzlich soll im Folgenden eine mögliche Verstimmung zwischen Frequenz des Mikrowellenfeldes und Frequenz des Übergangs zwischen den Grundzustandsniveaus (siehe auch Abbildung 2.11) in der Modellierung berücksichtigt werden.

Während der Einfluss der Verstimmung noch mithilfe der zeitabhängigen Schrödingergleichung berücksichtigt werden könnte [184], ist die Dekohärenz etwa durch Spin-Flips oder durch De-

phasierung durch die Schrödingergleichung nicht mehr vollständig beschreibbar. Der dadurch hervorgerufene Abbau der Population im $m_s = +1$ -Zustand könnte zwar noch als Verlust modelliert mithilfe der Schrödingergleichung betrachtet werden, bei Vorliegen einer Dephasierung stößt jedoch die Schrödingergleichung bei der Beschreibung der daraus resultierenden Änderung der Population im $m_s = 0$ -Zustand an ihre Grenzen [184]. Bloch-Gleichungen hingegen können solche Dekohärenzeffekte korrekt beschreiben, müssen jedoch in der Regel numerisch gelöst werden [135]. Für eine detaillierte Beschreibung der Modellierung mithilfe von Bloch-Gleichungen für ein modellhaftes Zwei-Niveau-System sei auf die Literatur [184] verwiesen. Im Folgenden werden lediglich die Auswirkungen für die Besetzungen beschrieben.

In Abbildung 2.12b sind die Besetzungen des $m_s = 0$ -Niveaus in Abhängigkeit der Dauer des Mikrowellenpulses unter Berücksichtigung einer exemplarischen Verstimmung aufgetragen. Stimmt die Trägerfrequenz ω des Mikrowellenfeldes nicht exakt mit der Frequenz ω_0 des Übergangs vom $m_s = 0$ in den $m_s = +1$ -Grundzustand überein, so führt die Verstimmung zu einer geringeren maximalen Besetzung des $m_s = +1$ -Zustands. Das Minimum der Besetzung des $m_s = 0$ -Zustands erreicht folglich nicht mehr die Null. Ferner führt eine angenommene Verstimmung zu einer Verkürzung der entsprechenden Pi-Pulse. Die Populationen rotieren mit einer effektiven Rabi-Frequenz Ω_{eff} , die sich aus der ursprünglichen Rabi-Frequenz Ω und der Verstimmung Δ wie folgt zusammensetzt [184]:

$$\Omega_{\text{eff}} = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2} . \quad (2.11)$$

In nicht isotopenreinen Diamantproben liegt aufgrund des angesprochenen Kernspinbades der ^{13}C -Atome stets eine wenn auch kleine Verstimmung vor, die sich zeitlich ändert. Folglich verändert sich auch gleichsam die generalisierte Rabi-Frequenz. Bei den Besetzungswahrscheinlichkeiten in einer Rabi-Sequenz überlagern sich in einem solchen Falle mehrere Sinuskurven mit leicht unterschiedlichen Perioden. Dieses Phänomen wird als *beating* bezeichnet, das bei ausreichend starker Ausprägung in den Rabi-Kurven sichtbar wird [185]. *Beating* kann darüber hinaus auftreten, wenn die kohärente Spinmanipulation an einem Ensemble von NV-Zentren mit leicht unterschiedlichen Frequenzen ω_0 durchgeführt wird.

In Abbildung 2.12b ist zusätzlich ein exemplarisches Beispiel für den zeitlichen Verlauf der Besetzungswahrscheinlichkeit des $m_s = 0$ -Zustands dargestellt, wenn während der Mikrowellenmanipulation der spontane Übergang vom $m_s = +1$ in das $m_s = 0$ -Niveau erlaubt wird (Spin-Flip). Die Sinuskurve ist gedämpft mit einer Exponentialkurve als Einhüllenden. Dieses Ergebnis deckt sich mit dem beobachteten Verlauf der Fluoreszenz in den gemessenen Rabi-Kurven (Abbildung 2.10a). Man kann sich die auftretende Dämpfung im Modell der Blochkugel etwa so vorstellen: Ohne Dekohärenzeffekte rotiert der Spin auf der Blochkugel um die x -Achse in der yz -Ebene. Kommt es zu einem Spin-Flip, so nimmt der Spin eine neue Stellung in der yz -Ebene ein, ohne die bisherige Phasenrelation zu beachten. Wird der Spin nun durch das Mikrowellenfeld weiter gedreht und im Anschluss optisch ausgelesen, so nimmt seine projizierte Länge im Mittel ab. Die resultierende mittlere Besetzung der Zustände ändert sich, über lange Zeit betrachtet wird sich die Amplitude der Besetzungswahrscheinlichkeit und somit auch die Amplitude der Fluoreszenz-

zozillationen in den Rabi-Sequenzen auf der Hälfte des Anfangswertes einpendeln.

Die Zeitkonstante der durch Besetzungsänderungen hervorgerufenen exponentiellen Dämpfung der an die Rabi-Oszillationen angepassten Sinuskurve entspricht der Spin-Relaxationszeit T_1 . Darüber hinaus sind noch zwei weitere Zeitskalen gebräuchlich, innerhalb der der Elektronenspin seinen Zustand beibehält, ehe er flippt oder seine Phase verliert, auf die hier nur der Vollständigkeit wegen kurz eingegangen werden soll. Bei der Kohärenzzeit T_2 werden zum einen homogene Dephasierungseffekte berücksichtigt, etwa hervorgerufen durch Fluktuationen des Magnetfelds oder des Mikrowellenfelds am Ort des Emitters oder auch durch Schwankungen in der Kohärenz des Lasers. Dephasierung im Modell der Blochkugel bedeutet, dass sich der Spin in der Äquatorialebene (xy -Ebene) oder einer Parallelebene beliebig orientiert. Derartige Änderungen des Spins ändern die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände nicht. Des Weiteren werden auch inhomogene Dephasierungseffekte berücksichtigt, etwa hervorgerufen durch unterschiedliche lokale Magnetfeldumgebungen oder Festkörperumgebungen eines Ensembles von Emittlern oder auch durch zeitliche lokale Magnetfeldfluktuationen bei einzelnen Emittlern. Die Kohärenzzeit T_2 von NV-Zentren ist mit über einer Sekunde, bei einer dynamischen Entkopplung des Spins von der Diamantumgebung, die längste gemessene Kohärenzzeit unter allen Festkörpersystemen [62,63]. Die Gesamtkohärenzzeit T_2^* berücksichtigt schließlich sowohl die Dekohärenzeffekte der T_2 -Zeit als auch mögliche Besetzungsänderungen der Zustände etwa durch Spin-Flips. Die T_2^* -Zeit ist daher stets kürzer als die T_2 -Zeit. Zwischen den drei angesprochenen Zeitskalen besteht folgender Zusammenhang [186]: $\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2}$. Ergänzend sei angemerkt, dass in der Literatur auch hiervon abweichende Definitionen der beschriebenen Zeitskalen üblich sind [187].

2.3.5 Linienverbreiterung der NV-ZPL

Die Nullphononenlinie des NV-Zentrums weist eine von der konkreten Lebensdauer des angeregten Zustands abhängige natürliche Linienbreite von etwa $\Delta\nu = 13$ MHz auf. Diese Linienbreite ist durch die Energie-Zeit-Unbestimmtheit nach Heisenberg festgelegt. In Experimenten werden jedoch üblicherweise größere Linienbreiten gemessen. Ursachen für diese Linienverbreiterung sind vor allem der Jahn-Teller-Effekt sowie die spektrale Diffusion.

Spektrale Diffusion

Wird eine Diamantprobe etwa mit einem Laser bei 532 nm bestrahlt, so können Fehlstellen oder Fremdatome im Diamantgitter Ladungen einfangen und wieder abgeben [157,188]. Befindet sich ein NV-Zentrum in der Nähe einer solchen durch die Laserbestrahlung induzierten Ladungsverteilung, so ist das NV-Zentrum deren elektrischem Feld ausgesetzt. Das elektrische Feld einer einzelnen Ladung ist zwar sehr schwach, in unmittelbarer Nähe zum Farbzentrum kann es dennoch die Energieniveaus des angeregten 3E -Zustands um mehrere hundert Gigahertz verschieben [188]. Da die Ladungen unter Laseranregung auch wieder verschwinden und stattdessen an anderen Positionen im Diamantgitter auftreten können, springen die Energieniveaus des angeregten Zustands und somit auch die Frequenz des ZPL-Übergangs. Die resultierende Linienverbreiterung

der Nullphononenlinie ist inhomogen, die Linienformfunktion eine Gaußkurve.

Bei Anregung mit einem durchstimmbaren Laser wurde bei etwa 540 nm (Photonenenergie 2,3 eV) eine erhöhte spektrale Sprungrate gemessen. Die Ionisierungsenergie eines Stickstoffatoms, das eine Fehlstelle im Diamantgitter besetzt, beträgt 2,2 eV [188]. Somit kann davon ausgegangen werden, dass im Diamant bereits vorhandene oder eingebrachte überschüssige Stickstoffatome eine Hauptursache für die spektrale Diffusion sind und dass sich der Effekt der spektralen Diffusion folglich auch nicht etwa durch starkes Abkühlen verhindern lässt. Das Einbringen von überschüssigem Stickstoff lässt sich bei der Herstellung von NV-Zentren nicht verhindern, da nicht aus jedem eingebrachten Stickstoffatom ein NV-Zentrum erzeugt werden kann. Die Quote für die Bildung eines NV-Zentrums pro implantiertem Stickstoffatom liegt bei der in dieser Arbeit verwendeten Implantationsenergie beispielsweise nur bei etwa 0,8 % [189].

Jahn-Teller-Effekt

In Abschnitt 2.3.1 wurde erläutert, dass bei Raumtemperatur im angeregten 3E -Zustand eine Entartung von E_x und E_y -Orbitalzweigen vorliegt. Diese Konfiguration weist eine relativ hohe Symmetrie und Energie auf. Da Systeme jedoch bemüht sind, energetisch und symmetrisch einen möglichst tiefen Zustand einzunehmen, versucht das NV-Zentrum die Entartung der Orbitalzweige im angeregten Zustand durch Modifikation seiner Struktur, die zu einer Symmetrierniedrigung führt, aufzuheben. Dieser Effekt wird als Jahn-Teller-Effekt bezeichnet [190]. Es konnte nachgewiesen werden, dass beim NV-Zentrum kein statischer, sondern ein dynamischer Jahn-Teller-Effekt vorliegt [173, 191, 192]. Hierbei findet eine Verschränkung der Orbitalzweige mit Schwingungsmoden des Diamantgitters statt, die einen Besetzungstransfer zwischen E_x und E_y -Orbitalzweig durch einen Zwei-Photonen Ramanprozess ermöglichen [173]. Da die beiden Orbitalzweige bei Flüssigheliumtemperaturen in sechs Energieniveaus aufspalten und somit die Entartung vollständig aufgehoben wird, ist zu erwarten, dass der Jahn-Teller-Effekt mit abnehmender Temperatur an Relevanz verliert. Dies konnte in experimentellen Messreihen gezeigt werden, die Linienbreite $\Delta\nu$ verkleinerte sich beispielsweise mit T^5 beim Abkühlen, gemessen ab 100 K [173].

3 Emitter-Resonator-Kopplung

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung der Kopplung eines NV-Zentrums an einen Resonator erarbeitet. Zunächst erfolgt hierzu eine Einführung in das Jaynes-Cummings-Modell. In diesem etablierten Modell wird ein Quantenemitter vereinfacht als Zwei-Niveau-System bestehend aus einem Grundzustand und einem angeregten Zustand modelliert und der Resonator als ideales System ohne Verluste angenommen. Im Anschluss daran wird das eingeführte Jaynes-Cummings-Modell um die Möglichkeit der spontanen Emission des Farbzentrons sowie um Dissipationseffekte des Resonators erweitert. Darüber hinaus werden in diesem Rahmen unterschiedliche Kopplungsregime diskutiert und insbesondere auch auf das für diese Arbeit relevante Purcell-Regime näher eingegangen. Im letzten Teil des Kapitels wird darauf aufbauend die Erarbeitung eines Ratengleichungsmodells zur Beschreibung der Wechselwirkung eines breitbandigen Emitters, wie beispielsweise eines NV-Zentrums, mit einem Resonator dargestellt. Mithilfe des Jaynes-Cummings-Modells eingeführte Konzepte, wie etwa der Purcell-Faktor, werden in diesem Abschnitt erneut aufgegriffen und in das Ratengleichungsmodell integriert.

3.1 Jaynes-Cummings-Modell

Zur Modellierung der Kopplung zwischen einem Farbzentrum und dem Lichtfeld eines Resonators wird das Farbzentrum vereinfacht als Zwei-Niveau-System angenommen. Dem Grundzustand, im Folgenden mit $|G\rangle$ bezeichnet, wird die Energie $-1/2\hbar\omega_0$ zugeordnet. Der angeregte Zustand liegt energetisch um $\Delta E = \hbar\omega_0$ über dem Grundzustand und wird im Folgenden mit $|A\rangle$ bezeichnet. Dieses Zwei-Niveau-System interagiert mit der Mode eines elektromagnetischen Lichtfelds, das in einem Resonator auf einem begrenzten Volumen eingeschlossen ist. Das Lichtfeld wird durch einen harmonischen Oszillator mit der Kreisfrequenz ω_R modelliert. Jaynes und Cummings stellten bereits 1963 den Hamiltonoperator für eine derartige Wechselwirkung auf [193]:

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_z + \hbar\omega_R \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar \left(g\hat{\sigma}^\dagger - g^*\hat{\sigma} \right) \left(\hat{a} - \hat{a}^\dagger \right) . \quad (3.1)$$

Im Folgenden wird zunächst der Hamiltonoperator und die darin enthaltenen Größen näher betrachtet. Der erste Summand stellt den Beitrag des ungestörten Zwei-Niveau-Systems dar:

$$\hat{H}_0 = \hbar\omega_0 \hat{\sigma}_z \quad (3.2)$$

mit dem eingeführten energetischen Abstand $\Delta E = \hbar\omega_0$ zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand des Zwei-Niveau-Systems und dem Projektionsoperator $\hat{\sigma}_z = 1/2 \cdot (|A\rangle\langle A| - |G\rangle\langle G|)$, der

3 Emitter-Resonator-Kopplung

das System auf den Grundzustand bzw. den angeregten Zustand projiziert. Der zweite Summand stellt den Beitrag des ungekoppelten Resonators dar:

$$\hat{H}_R = \hbar\omega_R \hat{a}^\dagger \hat{a} . \quad (3.3)$$

Die Operatoren \hat{a} und \hat{a}^\dagger beschreiben die Erzeugung bzw. Vernichtung von Photonen im Resonator, ω_R ist die eingeführte Kreisfrequenz der Resonatormode.

Die Wechselwirkung zwischen Resonatormode und dem Zwei-Niveau-System wird durch den dritten Term im Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator beschrieben:

$$\hat{H}_{WW} = \hbar \left(g\hat{\sigma}^\dagger - g^*\hat{\sigma} \right) \left(\hat{a} - \hat{a}^\dagger \right) . \quad (3.4)$$

Der Pauli-Operator $\hat{\sigma} = |G\rangle\langle A|$ beschreibt die Anregung des Zwei-Niveau-Systems und der Pauli-Operator $\hat{\sigma}^\dagger = |A\rangle\langle G|$ entsprechend den Übergang zurück in den Grundzustand. g ist dabei der Kopplungsparameter zwischen Resonatorfeld und Zwei-Niveau-System. Je größer dieser Parameter ist, desto größer wird der Einfluss von \hat{H}_{WW} auf den Gesamt-Hamiltonoperator in Gleichung (3.1) und desto stärker ist die vorliegende Kopplung. Für die Kopplungskonstante g gilt in der Dipolnäherung [194]:

$$g = \sqrt{\frac{\omega_R}{2\hbar n^2 \varepsilon_0 V}} \cdot |d_{AG}| \quad (3.5)$$

mit der Vakuumpermittivität ε_0 und dem Brechungsindex n des homogenen Mediums im Resonator. Der Dipolvektor \vec{d}_{AG} beschreibt den Dipolübergang zwischen dem angeregten Zustand in den Grundzustand des Zwei-Niveau-Systems. Das Modenvolumen V ist ein Maß für die räumliche Güte der Resonatormode. Für das Modenvolumen gilt [195]:

$$V = \frac{\int \varepsilon(\vec{r}) \left| \vec{E}(\vec{r}) \right|^2 d^3r}{\max \left[\varepsilon(\vec{r}) \left| \vec{E}(\vec{r}) \right|^2 \right]} \quad (3.6)$$

mit der Permittivität $\varepsilon(\vec{r})$ und dem elektrischen Feld $\vec{E}(\vec{r})$ der Resonatormode. Je kleiner das Modenvolumen ist, desto stärker ist die Kopplung eines Emitters an die Resonatormode.

Jaynes-Cummings-Modell in der Drehwellennäherung

Bei genauerer Betrachtung des Wechselwirkungsoperators \hat{H}_{WW} in Gleichung (3.4) fällt auf, dass sich der Operator aus sehr langsam oszillierenden Termen einerseits und sehr schnell oszillierenden Termen andererseits zusammensetzt. Terme mit Faktoren $\hat{\sigma}^\dagger \hat{a}^\dagger$ bzw. $\hat{\sigma} \hat{a}$ beschreiben Prozesse, bei denen entweder ein Photon in den Resonator emittiert und gleichzeitig das Zwei-Niveau-System angeregt wird oder der Emitter ein Photon absorbiert und gleichzeitig vom angeregten Zustand in den Grundzustand übergeht. Solche Prozesse verletzen offensichtlich den Energieerhaltungssatz und sind daher nur für sehr kurze durch die Heisenbergsche Unbestimmtheitsrelation erlaubte Zeitspannen möglich. Diese Prozesse oszillieren folglich wesentlich schneller

als die Prozesse, die durch die Terme mit den Faktoren $\hat{\sigma}\hat{a}^\dagger$ bzw. $\hat{\sigma}^\dagger\hat{a}$ beschrieben werden. Hier gibt der Emitter in Einklang mit dem Energieerhaltungssatz ein Photon ab und die Resonatormode nimmt gleichzeitig eines auf oder umgekehrt. Derartige Vorgänge variieren nur sehr langsam für eine nicht allzu große Verstimmung $\Delta = \omega_0 - \omega_R$ [196].

Die beschriebenen schnellen Prozesse mitteln sich über die Zeit hinaus, die langsam oszillierenden Terme dominieren folglich die Wechselwirkung zwischen Resonator und Zwei-Niveau-System. Durch Anwendung der Drehwellennäherung (*rotating wave approximation*, RWA) vereinfacht sich der Wechselwirkungsenergieoperator zu:

$$\hat{H}_{WW} = \hbar g \hat{\sigma}^\dagger \hat{a} + \hbar g^* \hat{\sigma} \hat{a}^\dagger . \quad (3.7)$$

Für den gesamten Jaynes-Cummings-Energieoperator gilt somit:

$$\hat{H} = \hbar \omega_0 \hat{\sigma}_z + \hbar \omega_R \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar g \hat{\sigma}^\dagger \hat{a} + \hbar g^* \hat{\sigma} \hat{a}^\dagger . \quad (3.8)$$

Eigenzustände und Eigenenergien

Ohne Berücksichtigung der Wechselwirkung zwischen Resonator und Zwei-Niveau-System ergibt sich die Gesamtenergie des zusammengesetzten Systems durch die Summe der Einzelenergien. Die Energie des Grundzustands des Zwei-Niveau-Systems beträgt $-1/2\hbar\omega_0$. Befinden sich n Photonen im Resonator, so steuern diese eine Energie von $n\hbar\omega_R$ bei. Für die Gesamtenergie des ungekoppelten Systems gilt in Abhängigkeit der Photonenzahl folglich:

$$\mathcal{E}_{G,n} = \hbar(n\omega_R - \omega_0/2) \quad (3.9)$$

$$\mathcal{E}_{A,n} = \hbar(n\omega_R + \omega_0/2) . \quad (3.10)$$

Die Zustände des Resonators werden in Abhängigkeit der Photonenzahl im Resonator mit $|n\rangle$, die Zustände des Zwei-Niveau-Systems wie eingeführt mit $|G\rangle$ bzw. $|A\rangle$ bezeichnet. Die Eigenzustände des zusammengesetzten Systems ergeben sich folglich als Tensorprodukte $|G,n\rangle$ bzw. $|A,n\rangle$. Die Energieniveaus der Zustände $|A,n\rangle$ und $|G,n+1\rangle$ sind für den Resonanzfall $\omega_R = \omega_0$ entartet. Liegt hingegen eine Verstimmung $\Delta = \omega_R - \omega_0$ vor, so wird die Entartung aufgehoben. Die Energieniveaus des ungekoppelten Systems sind in Abbildung 3.1 dargestellt.

Wird nun zusätzlich die Wechselwirkung von Resonator und Zwei-Niveau-System berücksichtigt, so werden die Energieniveaus $|A,n\rangle$ und $|G,n+1\rangle$, die im resonanten Falle entartet sind, jeweils paarweise gemischt. Die neuen Eigenzustände des Gesamt-Hamiltonoperators in Gleichung (3.8) können daher als Linearkombinationen der Zustände $|A,n\rangle$ und $|G,n+1\rangle$ des ungekoppelten Systems geschrieben werden. Der Grundzustand $|G,0\rangle$ bleibt durch die Wechselwirkung unverändert, die weiteren Eigenzustände werden mit $|\pm, n\rangle$ bezeichnet und ergeben sich zu [196]:

$$|+, n\rangle = \sin(\theta_n) |A, n\rangle + \cos(\theta_n) |G, n+1\rangle \quad (3.11)$$

$$|-, n\rangle = \cos(\theta_n) |A, n\rangle - \sin(\theta_n) |G, n+1\rangle . \quad (3.12)$$

Diese neuen Eigenzustände werden in der Literatur als *dressed states*, also wörtlich übersetzt

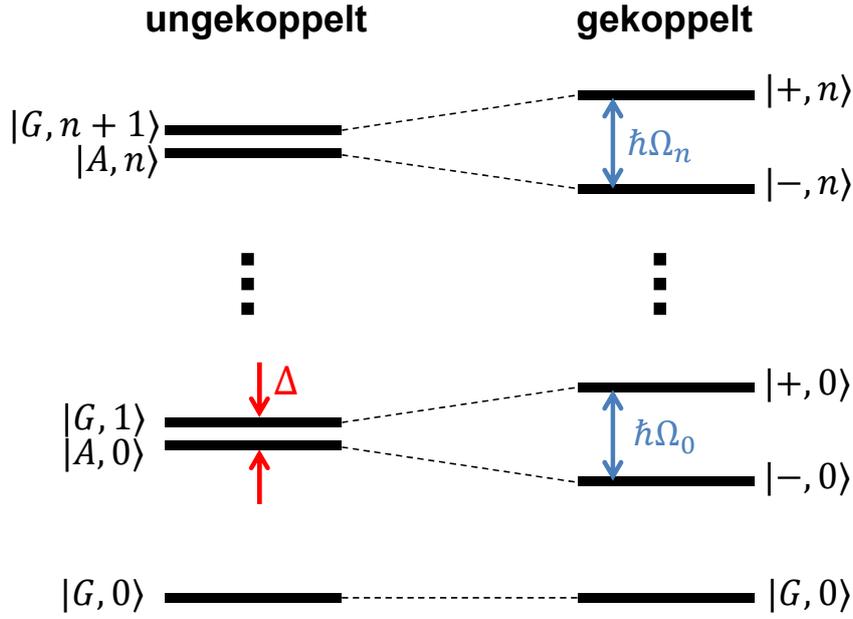


Abbildung 3.1: Energieniveauschema im Jaynes-Cummings-Modell. Das Zwei-Niveau-System weist einen Grundzustand $|G\rangle$ und einen angeregten Zustand $|A\rangle$ auf. Die Zustände des Resonators werden in Abhängigkeit der Photonenzahl im Resonator mit $|n\rangle$ bezeichnet. Die zusammengesetzten Zustände des ungekoppelten Systems ergeben sich über das Tensorprodukt zu $|A, n\rangle$ bzw. $|G, n\rangle$, die zugehörigen Energieniveaus sind um die Verstimmung $\Delta = \omega_R - \omega_0$ aufgespalten. Im gekoppelten Fall spalten die Energieniveaus um $\hbar\Omega_n$ mit der effektiven Rabi-Frequenz Ω_n auf. Direkt benachbarte Dubletts weisen den energetischen Abstand $\hbar\omega_R$ auf.

bekleidete Zustände bezeichnet [196]. Zwischen dem Mischungswinkel θ_n , der effektiven Rabi-Frequenz Ω_n und der Verstimmung $\Delta = \omega_R - \omega_0$ liegt folgender Zusammenhang vor [196]:

$$\cos(2\theta_n) = -\frac{\Delta}{\Omega_n} . \quad (3.13)$$

Die effektive Rabi-Frequenz ist dabei gegeben als:

$$\Omega_n = \sqrt{\Delta^2 + 4g^2(n+1)} . \quad (3.14)$$

In Abbildung 3.1 sind auch die Eigenzustände für den gekoppelten Fall dargestellt. Der Grundzustand $|G, 0\rangle$ bleibt durch die Wechselwirkung unberührt und behält seine Energie folglich bei. Die angeregten Zustände sind Dublett-Zustände, bei n Photonen im Resonator weist das Energieniveauschema $n+1$ Dubletts auf. Diese haben die folgenden Eigenenergien [194]:

$$\mathcal{E}_{\pm, n} = \hbar \left((n+1)\omega_R - \frac{1}{2}\omega_0 \right) \pm \frac{1}{2}\hbar\Omega_n . \quad (3.15)$$

Die Energieniveaus der Dubletts spalten somit jeweils um $\Delta E_n = \hbar\Omega_n$ auf. Der Abstand eines

Dubletts zum nächst benachbarten Dublett beträgt weiterhin $\hbar\omega_R$. Die Anwendung des Modells ist offensichtlich nur sinnvoll, wenn die Aufspaltung der Dublett-Zustände viel kleiner ist als der Abstand benachbarter Dubletts. Dies ist genau dann erfüllt, wenn $\Omega_n \ll \omega_R$ gilt.

Im gekoppelten System können zwischen den durch die Mischung entstandenen Eigenzustands-Dubletts kohärente Wechselwirkungen jeweils mit der effektiven Rabi-Frequenz Ω_n stattfinden. Es findet ein periodischer Energieaustausch mit der Frequenz Ω_n statt, bei dem anschaulich modelliert ein Photon in den Resonator emittiert und nach einigen Umläufen wieder vom Zwei-Niveau-System absorbiert wird. Dieser Vorgang ist sogar mit einem leeren Resonator möglich, denn auch bei Null Photonen im Resonator ist im gekoppelten System ein angeregter Dublett-Zustand vorhanden, in dem eine kohärente Wechselwirkung zwischen den Energieniveaus $|-,0\rangle$ und $|+,0\rangle$ angestoßen werden kann. Die zugehörige Rabi-Frequenz beträgt nach Gleichung (3.14) im resonanten Fall $\Omega_0 = 2g$ und wird als Vakuum-Rabifrequenz bezeichnet. Ist der Resonator im resonanten Fall hingegen mit n Photonen gefüllt, so ergibt sich die effektive Rabi-Frequenz zu $\Omega_n = \sqrt{(n+1)2g}$.

3.2 Jaynes-Cummings-Modell mit Dissipation

Wird ein Farbzentrum an einen realen Resonator gekoppelt, so kann zwar immer noch wie im vorangegangenen Abschnitt propagiert ein periodischer Austausch von Energie zwischen Zwei-Niveau-System und elektromagnetischem Lichtfeld im Resonator stattfinden, ein reales System weist jedoch stets Energieverluste auf. Ein Farbzentrum kann beispielsweise mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit spontan in den Grundzustand übergehen, ohne dass ein Photon in die Resonatormode eingekoppelt wird. Ferner können Photonen, die in eine Resonatormode emittiert werden den Resonator verlassen bevor sie vom Zwei-Niveau-System wieder absorbiert werden. Diese beiden Verlustkanäle werden im Folgenden in das eingeführte Modell integriert. Dazu werden zunächst die Dissipationsparameter γ und κ eingeführt.

Nicht-resonante Abklingrate γ

Ein Zwei-Niveau-System kann durch resonante Emission eines Photons in die Resonatormode, nicht-resonante Emission eines Photons oder aber auch auf andere nicht-resonante Art und Weise in den Grundzustand übergehen. Die Rate γ der nicht-resonanten Rückkehr in den Grundzustand wird als nicht-resonante Abklingrate oder auch spontane Emissionsrate im homogenen Medium bezeichnet. Befindet sich ein Emitter in einem als homogen angenommenen Medium, so gilt [194]:

$$\gamma = \frac{1}{3} \frac{n\omega_0^3 |d_{AG}|^2}{\pi\hbar\epsilon_0 c^3} \quad (3.16)$$

mit der Kreisfrequenz ω_0 des Emitters, der Lichtgeschwindigkeit c im Vakuum sowie dem bereits eingeführten Dipolvektor \vec{d}_{AG} des Dipolübergang zwischen dem angeregten Zustand und dem Grundzustand. Der Vorfaktor $1/3$ resultiert aus einer als zufällig angenommenen Dipolorientierung relativ zum ungerichteten elektrischen Vakuumfeld im homogenen Medium.

Bei einem an eine Resonatormode gekoppelten realen NV-Zentrum erfolgt die Rückkehr in den Grundzustand nie ausschließlich durch Photonenemission in die Mode, es liegt stets eine gewisse nicht-resonante Abklingrate γ vor. Angenommen eine Resonatormode ist auf die Wellenlänge der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums abgestimmt, so werden aufgrund des breitbandigen Emissionscharakters insbesondere Photonen bei Wellenlängen außerhalb der Resonanzwellenlänge der Resonatormode nicht-resonant emittiert. Ferner kann das NV-Zentrum auch über nicht-strahlende Übergänge in den Grundzustand zurückkehren, die Quantenausbeute beträgt für NV-Zentren in Diamant-Volumenmaterial etwa 70 % [197]. Dies bedeutet, dass in 30 % der Fälle eine nicht-strahlende und somit insbesondere nicht-resonante Rückkehr in den Grundzustand erfolgt.

Abklingrate κ der Resonatorphotonen

Ein Photon in der Resonatormode kann den Resonator verlassen, ehe das Lichtteilchen von dem Zwei-Niveau-System reabsorbiert wird. Ursachen für den Verlust eines Photons können etwa eine nicht perfekt reflektierende Umgebung oder auch absorbierende Materialien im Resonator sein. Die zeitliche Verlustrate an Photonen wird als Abklingrate κ der Resonatorphotonen bezeichnet. Für diese Rate gilt:

$$\kappa = \frac{\omega_R}{Q} \quad (3.17)$$

mit dem Gütefaktor Q der Resonatormode, der über Kreisfrequenz und Linienbreite $\Delta\omega_R$ der Resonatormode im Spektrum wie folgt festgelegt ist:

$$Q = \frac{\omega_R}{\Delta\omega_R} . \quad (3.18)$$

Mastergleichung für dissipative Effekte

Um Dissipationseffekte berücksichtigen zu können, wird unser bisheriges Modell bestehend aus dem Zwei-Niveau-System, das mit einem Resonatorfeld wechselwirkt, um ein äußeres Reservoir erweitert. Die Dynamik eines solchen offenen Quantensystems wird üblicherweise mithilfe einer Mastergleichung beschrieben. Dabei wird angenommen, dass die Wechselwirkung mit dem Reservoir derart schwach ist, dass der Zustand des Reservoirs von der stattfindenden Wechselwirkung kaum beeinflusst wird (Born-Näherung). Ferner wird die Wechselwirkung mit dem Reservoir derart modelliert, dass die Korrelationen zwischen System und Reservoir vernachlässigbar gegenüber der Dynamik des Systems sind (Markov-Näherung). Die aktuelle Wechselwirkung mit dem Reservoir ist somit unabhängig von vorhergegangenen Wechselwirkungen. Die Mastergleichung wird wie in der Literatur üblich in Abhängigkeit des Dichteoperators $\hat{\rho}$ angegeben [196]:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_{\text{eff}}, \hat{\rho} \right] + \sum_m \left(\hat{C}_m \hat{\rho} \hat{C}_m^\dagger \right) \quad (3.19)$$

mit den Zerfalloperatoren \hat{C}_m , die die Wechselwirkung von Reservoir und System beschreiben, sowie dem effektiven Hamiltonoperator \hat{H}_{eff} , der sich aus dem Jaynes-Cummings-Hamiltonoperator

\hat{H}_{JC} und einem Hamiltonoperator $\hat{H}_{\text{Verluste}}$ wie folgt zusammensetzt [196]:

$$\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{H}_{JC} + \hat{H}_{\text{Verluste}} = \hat{H}_{JC} - \frac{i\hbar}{2} \left(\sum_m \hat{C}_m^\dagger \hat{C}_m \right). \quad (3.20)$$

In unserem Fall liegen zwei Arten von Dissipationsprozessen vor, beschrieben durch die eingeführten Parameter γ und κ . Die zugehörigen Zerfallsoperatoren sind $\hat{C}_\gamma = \sqrt{\gamma}\hat{\sigma}$ und $\hat{C}_\kappa = \sqrt{\kappa}\hat{a}$ mit den bereits eingeführten Projektionsoperatoren $\hat{\sigma}$ und \hat{a} . Damit ergibt sich durch Einsetzen in die Gleichungen (3.19) und (3.20) die konkrete Mastergleichung:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_{\text{eff}}, \hat{\rho} \right] + \gamma \hat{\sigma} \hat{\rho} \hat{\sigma}^\dagger + \kappa \hat{a} \hat{\rho} \hat{a}^\dagger \quad (3.21)$$

mit

$$\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{H}_{JC} + \hat{H}_{\text{Verluste}} = \hat{H}_{JC} - \frac{i\hbar}{2} \left(\gamma \hat{\sigma} \hat{\sigma}^\dagger + \kappa \hat{a} \hat{a}^\dagger \right). \quad (3.22)$$

Dieser effektive Hamiltonoperator liefert die Eigenwerte des Modellsystems mit den berücksichtigten Verlusten. Die Eigenzustände sind in Serien von Dubletts gegliedert wie gewohnt in der Basis des ungekoppelten Systems aus Emitter und Resonator. Die Eigenenergien ergeben sich als Eigenwerte des Hamiltonoperators \hat{H}_{eff} zu [198]:

$$\mathcal{E}'_{\pm, n} = \hbar \left((n+1)\omega_R - \frac{1}{2}\omega_0 \right) \pm \frac{1}{2}\hbar\Omega'_n - i\hbar \left[\kappa \left(n + \frac{1}{2} \right) + \frac{\gamma}{2} \right] \quad (3.23)$$

mit der Rabi-Frequenz Ω'_n des verlustbehafteten Systems

$$\Omega'_n = \sqrt{[\Delta - i(\gamma - \kappa)]^2 + 4g^2(n+1)}. \quad (3.24)$$

Für den Grenzfall $\kappa = 0$ und $\gamma = 0$ ergeben sich die im Abschnitt zuvor hergeleiteten Eigenenergien und Rabi-Frequenzen in den Gleichungen (3.14) bzw. (3.15) des gekoppelten Systems ohne dissipative Effekte.

Kopplungsregime

Für das dissipative System werden zwei grundlegende Fälle unterschieden, das Regime der starken und das Regime der schwachen Kopplung. Diese beiden Kopplungsregime werden im Folgenden exemplarisch für den resonanten Fall $\Delta = 0$ diskutiert.

Gilt $g \gg (\gamma, \kappa)$, so weist die Kopplung zwischen Emitter und Resonatormode eine wesentlich höhere Rate als die beiden Verlustkanäle auf. In diesem Regime der starken Kopplung kann ein kohärenter Austausch zwischen Emitter und Resonatormode bzw. genauer gesagt zwischen den Dublett-Zuständen des gekoppelten dissipativen Systems mit der in diesem Falle reellwertigen Rabi-Frequenz $\Omega'_n = \sqrt{-(\gamma - \kappa)^2 + 4g^2(n+1)}$ stattfinden. Aufgrund der auftretenden Verluste kann sich jedoch die Besetzung eines solchen Dubletts zeitlich ändern. Dadurch zerfällt die Population irreversibel und somit inkohärent von einem Dublett $|\pm, n\rangle$ in das nächst niedrigere

3 Emitter-Resonator-Kopplung

Dublett $|\pm, n-1\rangle$, ehe das gekoppelte System unter Umständen sogar irgendwann im Grundzustand angekommen ist. Im Regime der starken Kopplung läuft dieser Populationszerfall aber deutlich langsamer ab als die kohärenten Rabi-Oszillationen innerhalb eines Dubletts.

Gilt $g \ll (\gamma, \kappa)$, so dominieren die dissipativen Verluste über die kohärente Wechselwirkung. Die Kopplungskonstante g spielt nahezu keine Rolle mehr. Die Energieniveaus der Dublett-Zustände werden im Grenzfall $g = 0$ entartet, folglich können keine kohärenten Rabi-Oszillationen zwischen den einzelnen Dublett-Niveaus des gekoppelten Systems mehr stattfinden. Mathematisch betrachtet wird die Rabi-Frequenz Ω'_n rein imaginär. Dieses Regime wird als schwaches Kopplungsregime oder auch Purcell-Regime bezeichnet.

Wird etwa ein NV-Zentrum an einen typischen herstellbaren Resonator gekoppelt, so ist üblicherweise die Abklingrate κ der Resonatorphotonen größer als die nicht-resonante Abklingrate γ . Soll durch diese Kopplung das Regime der starken Kopplung erreicht werden, so muss folglich die Bedingung $g \gg \kappa$ erfüllt sein. Setzt man Gleichung (3.16) in Gleichung (3.5) ein, so ergibt sich folgender Ausdruck für die Kopplungskonstante g :

$$g = \sqrt{\frac{\omega_R}{2\hbar n^2 \epsilon_0 V}} \cdot |d_{AG}| = \sqrt{\frac{3\gamma\pi c^3}{2n^3 V \omega_R^2}} = \sqrt{\frac{3}{16\pi^2} \frac{\gamma\omega_R}{V} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3}. \quad (3.25)$$

Damit lässt sich zusammen mit der Beziehung $\kappa = \omega_R/Q$ aus Gleichung (3.17) die folgende Bedingung für starke Kopplung herleiten:

$$\sqrt{\frac{3}{16\pi^2} \frac{\gamma\omega_R}{V} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3} = g \gg \kappa = \frac{\omega_R}{Q} \quad (3.26)$$

$$Q \gg \sqrt{\frac{16\pi^2 \omega_R V}{3\gamma} \left(\frac{n}{\lambda}\right)^3}. \quad (3.27)$$

Hierbei ist anzumerken, dass im angenommenen Resonanzfall $\omega_R = \omega_0$ gilt.

Anhand der Gleichungen lässt sich erkennen, dass der benötigte Gütefaktor für das Eintreten in das Regime der starken Kopplung umso kleiner ist, je kürzer die Lebensdauer und je größer die Emissionswellenlänge eines an den Resonator gekoppelten Emitters ist. Ferner erfordern Resonatoren mit kleineren Modenvolumina kleinere Gütefaktoren um das Regime der starken Kopplung zu erreichen. Wie in den Kapiteln 4 und 6 noch dargelegt wird, weisen die in dieser Arbeit untersuchten Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen Modenvolumina von etwa $V \approx 1 \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ bei Gütefaktoren von typischerweise $Q = 2000$ mit Maximalwerten bis hin zu $Q = 8250$ auf. Ist der Resonator auf die Nullphononenlinie eines NV-Zentrums bei 637 nm abgestimmt, so ergibt sich die Abklingrate der Resonatorphotonen zu $\kappa = 1,5$ THz bei $Q = 2000$ bzw. $\kappa = 0,4$ THz bei $Q = 8250$. Bei einer typischen Lebensdauer eines NV-Zentrums von 12 ns ergibt sich bei Annahme einer natürlichen Linienbreite eine nicht-resonante Abklingrate von $\gamma = 83$ MHz für den ZPL-Übergang. Folglich ist die zuvor angenommene Bedingung $\kappa > \gamma$ erfüllt, die Resonatorverluste sind größer als die nicht-resonante Abklingrate.

Um das Regime der starken Kopplung zu erreichen, müssten somit nach der einfachen Abschätzung in Gleichung (3.27) für ein NV-Zentrum Gütefaktoren von über 40 000 experimentell reali-

siert werden. Bei suboptimaler Positionierung des Emitters zum Resonatorfeld oder ungünstiger Dipolorientierung werden entsprechend noch höhere Gütefaktoren von Nöten sein. Somit kann davon ausgegangen werden, dass mit den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Resonatoren stets eine Kopplung im schwachen Kopplungsregime vorliegen wird. Daher wird sich in den folgenden Betrachtungen auf das Purcell-Regime beschränkt und auf dieses Regime im nächsten Abschnitt näher eingegangen.

3.3 Kopplung im Purcell-Regime

Im Regime der schwachen Kopplung werden üblicherweise wiederum zwei Fälle unterschieden. Ist die nicht-resonante Abklingrate γ des Zwei-Niveau-Systems wesentlich größer als die Abklingrate κ der Resonatorphotonen, so dominiert der Emitter durch seine spontane Emission die Verluste des dissipativen Systems, $\gamma \gg (\kappa, g)$. Man spricht vom sogenannten *bad emitter limit*. Im *bad cavity limit* hingegen dominiert der Verlust an Photonen aus dem Resonator die Dynamik des Systems, $\kappa \gg (\gamma, g)$. Da sich wie bereits angesprochen die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Kopplungsexperimente im zuletzt genannten Regime bewegen, beschränken sich die nachfolgenden Betrachtungen auf das *bad cavity limit*.

Obwohl die Resonatorverluste mit der Rate κ die Dynamik des gekoppelten Systems dominieren, führt die Wechselwirkung dennoch zu einer veränderten spontanen Emissionsrate des Zwei-Niveau-Systems. Angenommen ein Emitter habe im homogenen Medium, dies entspricht beispielsweise einem NV-Zentrum in Diamant-Volumenmaterial, die spontane Emissionsrate γ wie zuvor eingeführt, dann ergeben sich im *bad cavity limit* in Resonanz nachfolgende Eigenwerte des effektiven Hamiltonoperators \hat{H}_{eff} [198]:

$$\mathcal{E}_{+,n} = \hbar\omega \left(n + \frac{1}{2} \right) - i\hbar \left[\kappa \left(1 + \frac{4g^2}{\kappa^2} \right) (n+1) + \gamma \left(1 + \frac{4g^2}{\kappa\gamma} \right) \right] \quad (3.28)$$

$$\mathcal{E}_{-,n} = \hbar\omega \left(n + \frac{1}{2} \right) - i\hbar\kappa \left(1 - \frac{4g^2}{\kappa^2} \right) (n+1) . \quad (3.29)$$

Die spontane Emissionsrate wird durch die Kopplung an den Resonator verändert. Wie anhand Gleichung (3.28) zu erkennen ist, ergibt sich die Gesamtemissionsrate in Resonatorkopplung zu:

$$\gamma_{\text{Res}} = \gamma \left(1 + \frac{4g^2}{\kappa\gamma} \right) = \gamma + \frac{4g^2}{\kappa} = \gamma + \Delta\gamma . \quad (3.30)$$

Die Gesamtemissionsrate in Resonatorkopplung γ_{Res} ist folglich um $\Delta\gamma$ gegenüber der Emissionsrate γ im ungekoppelten Fall erhöht. Der Quotient aus dieser Änderung der Emissionsrate und der Rate γ im ungekoppelten Fall beschreibt die relative Änderung der Emissionsrate durch die Resonatorkopplung und erhält das Symbol F :

$$F = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} = \frac{4g^2}{\kappa\gamma} . \quad (3.31)$$

3 Emitter-Resonator-Kopplung

Diese physikalische Größe wurde erstmals im Jahre 1946 von Purcell [76] beschrieben und wird als Purcell-Faktor F bezeichnet. Setzt man zusätzlich die Gleichungen (3.5) für g , (3.16) für γ sowie (3.17) für κ ein, so erhält man die oft zitierte Formel für den Purcell-Faktor:

$$F = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V} \left(\frac{\lambda}{n} \right)^3 . \quad (3.32)$$

Der Purcell-Faktor ist eine geeignete Kenngröße für die Qualität eines Resonators bezogen auf potenzielle Kopplungen an Emitter. Je größer dabei der Purcell-Faktor ist, desto stärker wird durch die Resonatorkopplung die spontane Emissionsrate des Emitters erhöht. Anhand von Gleichung (3.32) lässt sich direkt ableiten, welche Anforderungen ein Resonator für eine möglichst große Überhöhung der spontanen Emission bieten sollte, wünschenswert sind möglichst hohe Gütefaktoren Q bei kleinen Modenvolumina V .

An dieser Stelle sei angemerkt, dass in der Literatur abweichend von der hier getroffenen Definition auch die Definition des Purcell-Faktors als das Verhältnis der Rate γ_{Res} im gekoppelten Fall zur Rate γ im ungekoppelten Fall üblich ist. Für diese Festlegung des Purcell-Faktors \tilde{F} gilt:

$$\tilde{F} = \frac{\gamma_{\text{Res}}}{\gamma} = \frac{\gamma + \Delta\gamma}{\gamma} = 1 + F . \quad (3.33)$$

Wird der Purcell-Faktor derart festgelegt, so impliziert ein Purcell-Faktor kleiner eins eine Unterdrückung der spontanen Emission und größer eins entsprechend eine Erhöhung der spontanen Emission durch die Resonatorkopplung.

Mithilfe des Purcell-Faktors lässt sich auch eine Aussage über den Photonenanteil treffen, der in die Resonatormode emittiert wird, bezogen auf die Gesamtzahl der emittierten Photonen. Für diesen Parameter β , auch Kopplungsfaktor der spontanen Emission genannt, gilt:

$$\beta = \frac{\Delta\gamma}{\Delta\gamma + \gamma} = \frac{F}{F + 1} . \quad (3.34)$$

Bei Kopplung eines Emitters an einen idealen Resonator strebt dieser Faktor gegen eins, in realen Anordnungen ist der β -Faktor jedoch in der Regel deutlich kleiner als eins.

Lokale Zustandsdichte

Ein verbreitetes Erklärungsmodell der veränderten spontanen Emissionsrate eines an eine Resonatormode gekoppelten Emitters ist das Modell der Zustandsdichte. Die Zustandsdichte beschreibt die Anzahl der Moden des Strahlungsfeldes, in die ein Emitter emittieren kann. Diese ist im Allgemeinen ortsabhängig. Im Folgenden wird zunächst ein Emitter im homogenen Medium betrachtet.

Für die Zustandsdichte (*density of states*, DOS) für Photonenmoden im freien Raum gilt [194]:

$$\text{DOS}(\omega) = \frac{\omega^2 V}{\pi^2 c^3} . \quad (3.35)$$

Mithilfe dieser Zustandsdichte lässt sich die spontane Emissionsrate γ des Emitters mit Kreis-

frequenz ω_0 über Fermis Goldene Regel wie folgt berechnen [194]:

$$\gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2} |W_{AG}|^2 \text{DOS}(\omega_0) \quad (3.36)$$

mit dem Übergangsmatrixelement $W_{AG} = \vec{d}_{AG} \cdot \vec{E}$ vom angeregten Zustand in den Grundzustand des Emitters, dem elektrischen Vakuumfeld \vec{E} im homogenen Medium mit Betrag $|\vec{E}| = \sqrt{\hbar\omega/2n^2\varepsilon_0V}$ und dem bereits eingeführten Dipolmoment \vec{d}_{AG} des Übergangs. Das Betragsquadrat des Übergangsmatrixelements kann somit geschrieben werden als:

$$|W_{AG}|^2 = \frac{1}{3} |\langle \vec{d}_{AG} \cdot \vec{E} \rangle|^2 = \frac{\hbar\omega_0 |d_{AG}|^2}{6n^2\varepsilon_0V}. \quad (3.37)$$

Der Vorfaktor $1/3$ resultiert aus der Mittellung aller möglichen Dipolorientierungen relativ zum elektrischen Vakuumfeld, das keine Vorzugsrichtung aufweist. Durch Einsetzen der Gleichung (3.37) in Gleichung (3.36) erhält man für γ im homogenen Medium den nachfolgenden Ausdruck:

$$\gamma = \frac{1}{3} \frac{\omega_0^3 |d_{AG}|^2}{n^2\pi\hbar\varepsilon_0c^3} = \frac{8}{3} \frac{n\pi^2 |d_{AG}|^2}{\hbar\varepsilon_0\lambda^3}. \quad (3.38)$$

Man beachte, dass λ hier die Vakuumwellenlänge des emittierten Lichts darstellt.

Angenommen der Emitter wird jetzt an eine Mode eines Resonators im gleichen Medium mit Brechungsindex n gekoppelt. Diese Mode besitze eine lorentzförmige spektrale Verteilung, wie sie generell für Resonatormoden und somit auch für die Moden eines Resonators in einer photonischen Kristallstruktur vorliegt (siehe Kapitel 4). Die Halbwertsbreite der Resonatormode sei $\Delta\omega_R$ und die Kreisfrequenz wie gewohnt ω_R . Die Zustandsdichte innerhalb des Resonators ist dann ebenfalls lorentzförmig und ergibt sich in normierter Form zu [194]:

$$\text{DOS}_R(\omega) = \frac{2}{\pi\Delta\omega_R} \frac{\Delta\omega_R^2}{4(\omega - \omega_R)^2 + \Delta\omega_R^2}. \quad (3.39)$$

Durch Einsetzen der Gleichung (3.17) für den Gütefaktor Q gilt:

$$\text{DOS}_R(\omega) = \frac{2Q}{\pi\omega_R} \frac{\Delta\omega_R^2}{4(\omega - \omega_R)^2 + \Delta\omega_R^2}. \quad (3.40)$$

Auch das Übergangsmatrixelement verändert sich in Resonatorkopplung. Eine einfache Mittellung der relativen Dipolorientierung zum elektrischen Feld über die drei Raumrichtungen, wie im Fall des homogenen Mediums erfolgt, kann hier nicht erfolgen, da das elektrische Feld der Resonatormode eine feste Vorzugsrichtung aufweist. Die relative Orientierung des Dipols zum elektrischen Feld der Mode beeinflusst das Betragsquadrat des Übergangsmatrixelements stattdessen durch einen Korrekturfaktor R_{Dipol} :

$$R_{\text{Dipol}} = |\langle \vec{e}_{d_{AG}} \cdot \vec{e}_E \rangle|^2 \quad (3.41)$$

mit den Richtungsvektoren $\vec{e}_{d_{AG}}$ des Dipols und \vec{e}_E des elektrischen Feldes der Resonatormode.

3 Emitter-Resonator-Kopplung

Darüber hinaus führt wegen $W_{AG} = \vec{d}_{AG} \cdot \vec{E}$ eine nicht perfekte Positionierung des Emitters relativ zum Modenfeld zu einem weiteren Korrekturfaktor R_{Pos} :

$$R_{\text{Pos}} = \frac{|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}{\max|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}. \quad (3.42)$$

Der Faktor berücksichtigt somit die relative Stärke des elektrischen Felds der Mode am Ort \vec{r}_0 des Emitters. Das Betragsquadrat des Übergangsmatrixelements ergibt sich folglich zu:

$$\begin{aligned} |W_{AG}|^2 &= |\langle \vec{d}_{AG} \cdot \vec{E} \rangle|^2 \\ |W_{AG}|^2 &= \frac{\hbar\omega_R R_{\text{Dipol}} R_{\text{Pos}} |d_{AG}|^2}{2n^2\varepsilon_0 V} \\ |W_{AG}|^2 &= \frac{\hbar\omega_R |d_{AG}|^2}{2n^2\varepsilon_0 V} \cdot |\langle \vec{e}_{d_{AG}} \cdot \vec{e}_E \rangle|^2 \cdot \frac{|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}{\max|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}. \end{aligned} \quad (3.43)$$

Für die spontane Emissionsrate $\Delta\gamma$ des Emitters in die Resonatormode gilt mit Fermis Goldener Regel aus Gleichung (3.36):

$$\Delta\gamma = \frac{2|d_{AG}|^2 Q}{n^2\hbar\varepsilon_0 V} \cdot \frac{\Delta\omega_R^2}{4(\omega_0 - \omega_R)^2 + \Delta\omega_R^2} \cdot |\langle \vec{e}_{d_{AG}} \cdot \vec{e}_E \rangle|^2 \cdot \frac{|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}{\max|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}. \quad (3.44)$$

Mithilfe der hergeleiteten Gleichungen (3.38) und (3.44) lässt sich ein neuer Ausdruck für den Purcell-Faktor F aufstellen:

$$F = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} = \frac{3Q}{4\pi^2 V} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \cdot \frac{\Delta\omega_R^2}{4(\omega - \omega_R)^2 + \Delta\omega_R^2} \cdot |\langle \vec{e}_{d_{AG}} \cdot \vec{e}_E \rangle|^2 \cdot \frac{|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}{\max|\vec{E}(\vec{r}_0)|^2}. \quad (3.45)$$

Durch Vergleich mit der zuvor eingeführten Formel (3.32)

$$F = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \quad (3.46)$$

lässt sich erkennen, dass die bekannte Formel für den Purcell-Faktor den Sonderfall für einen perfekt zum elektrischen Feld der Resonatormode orientierten Emitter ($R_{\text{Dipol}} = 1$) in perfekter Resonanz ($\omega_0 = \omega_R$) und optimaler räumlicher Positionierung ($R_{\text{Pos}} = 1$) darstellt. Der Faktor

$$R_\lambda = \frac{\Delta\omega_R^2}{4(\omega - \omega_R)^2 + \Delta\omega_R^2} \quad (3.47)$$

kann folglich als spektraler Korrekturfaktor interpretiert werden.

3.4 Kopplung an breitbandige Emitter

In den vorangegangenen Abschnitten wurde basierend auf dem Jaynes-Cummings-Modell ein Modell zur Beschreibung der Kopplung eines Emitters an eine Resonatormode im Purcell-Regime

entwickelt. Die Kopplungsexperimente in dieser Arbeit finden alle wie hinreichend dargelegt in diesem Regime der schwachen Kopplung statt, genauer gesagt im *bad cavity limit*. Allerdings war die implizite Annahme bislang stets, dass die Emission des Zwei-Niveau-Systems sehr schmalbandig ist, zumindest schmalbandiger als die Breite der Resonatormode. Diese Annahme kann für das NV-Zentrum so nicht gehalten werden. Eine typische Mode eines in dieser Arbeit beschriebenen Resonators hat eine Halbwertsbreite von unter $\Delta\lambda = 0,5$ nm, die NV-Emission erstreckt sich jedoch aufgrund des breiten phononischen Seitenbandes über mehr als 100 nm im Spektrum. Ferner ist die Nullphononenlinie wie in Abschnitt 2.3.5 dargelegt wurde durch spektrale Diffusion oder auch den Jahn-Teller-Effekt verbreitert und weist daher insbesondere bei Raumtemperatur Breiten in der Größenordnung der Breite der Resonatormode oder sogar größere Halbwertsbreiten auf. Ein derart verbreitertes Emissionsspektrum findet sich nicht nur bei Farbzentren in Diamant, sondern auch bei anderen Festkörperemittern wie etwa Quantenpunkten [199,200]. Die Einbettung eines Emitters in ein Festkörpergitter führt grundsätzlich zur Verbreiterung jedes einzelnen Übergangs durch Dephasierungseffekte oder auch zur Ausbildung vibronischer Seitenbänder wie etwa bei Farbzentren in Diamant vorliegend.

Im Jahre 2010 wurde von Auffèves et al. [200] ein Ratengleichungsmodell zur Beschreibung der Kopplung von Quantenpunkten als breitbandige Emittter an einen Resonator entwickelt. In diesem Rahmen wurde insbesondere das Konzept eines generalisierten Purcell-Faktors für eine derartige Kopplung eingeführt. Albrecht et al. [149] entwickelten 2013 auf Basis dieser Erkenntnisse ein erweitertes Ratengleichungsmodell für die Kopplung eines NV-Zentrums an einen Resonator und berücksichtigten dabei in ihrem Modell neben der Dephasierung zusätzlich die vibronischen Übergänge in den Grundzustand des NV-Zentrums. Aufbauend auf diesen Modellen kann im Folgenden unter anderem ein generalisierter Purcell-Faktor für eine Mode in Resonanz mit einer verbreiterten Nullphononenlinie eines NV-Zentrums oder auch in Resonanz mit einem phononischen Seitenbandübergang definiert werden.

Im Folgenden sollen die Grundzüge des Ratengleichungsmodells für die Kopplung eines NV-Zentrums an eine Resonatormode dargelegt werden. Die Vorgehensweise folgt dabei den Überlegungen in [201]. Für eine tiefgehende Beschäftigung mit Modellen der Kopplung eines breitbandigen Emitters an einen schmalbandige Mode sei auf die Literaturen [149,200–202] verwiesen.

Ratengleichungsmodell

Wie in Abbildung 3.2a dargestellt wird das NV-Zentrum ähnlich der Modellierung im Jaynes-Cummings-Modell als atomares Zwei-Niveau-System bestehend aus einem angeregten Zustand $|A\rangle$ mit Energie $\hbar\omega_A$ und einem Grundzustand $|G_0\rangle$ mit Energie $\hbar\omega_0$ modelliert. Im Folgenden wird von einer dauerhaften nicht-resonanten Anregung des NV-Zentrums etwa mit einem grünen Laser ausgegangen. Dies führt, wie in Kapitel 2 erläutert wurde, bereits nach wenigen optischen Zyklen zu einer Spinpolarisation des Emitters in der Spinprojektion $m_s = 0$. Somit ist es gerechtfertigt, die Unterteilung der Zustände in die Spin-Unterniveaus zu vernachlässigen. Der Grundzustand weist im Gegensatz zum einfachen Jaynes-Cummings-Modell zusätzlich n höhere vibronische Zustände $|G_1\rangle, \dots, |G_i\rangle, \dots, |G_n\rangle$ mit den zugehörigen Energien $\hbar\omega_i$ auf. Nach

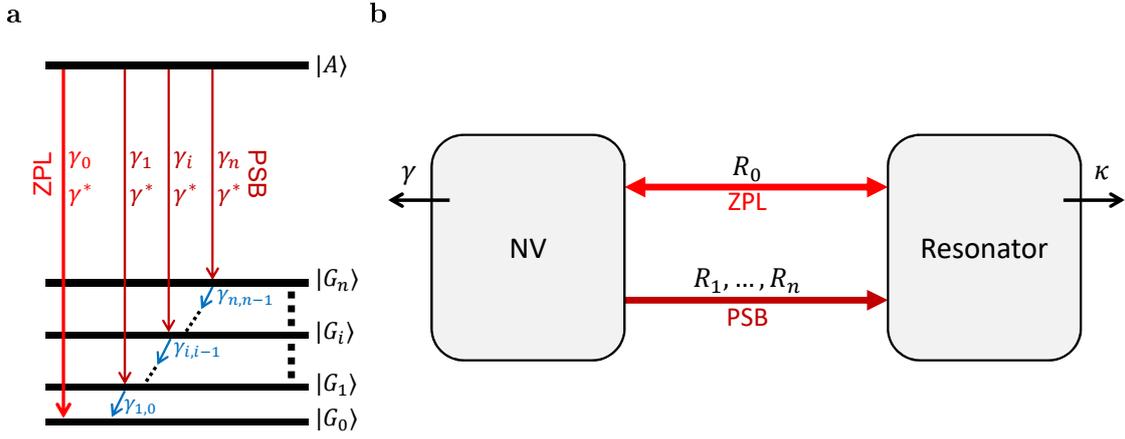


Abbildung 3.2: Ratengleichungsmodell. (a) Das NV-Zentrum wird als Mehr-Niveau-System bestehend aus einem angeregten Zustand $|A\rangle$ und einem Grundzustand $|G_0\rangle$ mit n höheren vibronischen Grundzustandsniveaus $|G_1\rangle, \dots, |G_n\rangle$ modelliert. Die spontane Emissionsrate γ_0 entspricht der Rate des Nullphononenübergangs und $\gamma_1, \dots, \gamma_n$ den Raten der phononischen Seitenbandübergänge. Alle Übergänge sind mit der Dephasierungsrate γ^* verbreitert. Die höheren vibronischen Grundzustände zerfallen sehr schnell weiter mit den Raten $\gamma_{i,i-1}$. (b) Modell der gekoppelten Boxen. Das NV-Zentrum koppelt mit einer Rate R_0 an den Resonator. Dieser Wechselwirkungskanal entspricht der ZPL und ist in beiden Richtungen durchlässig. Die phononischen Seitenbandübergänge werden durch Raten R_1, \dots, R_n beschrieben. Da bei diesen Zerfällen zusätzlich ein Phonon emittiert wird, sind diese Zerfallskanäle nur in eine Richtung offen. Die spontane Emission des NV-Zentrums in das umgebende Reservoir wird durch die Rate γ beschrieben. Die Rate κ beschreibt den Verlust an Resonatorphotonen.

Anregung des NV-Zentrums kann der angeregte Zustand $|A\rangle$ wie gewohnt über die Nullphononenlinie in den Grundzustand ($|A\rangle \rightarrow |G_0\rangle$) mit der spontanen Emissionsrate γ_0 zerfallen. Darüber hinaus ist aber auch eine Rückkehr in den Grundzustand über die phononischen Seitenbandübergänge in die höheren vibronischen Energieniveaus des Grundzustands ($|A\rangle \rightarrow |G_i\rangle$) möglich mit den zugehörigen Raten γ_i . Die höheren vibronischen Zustände weisen eine kurze Lebensdauer auf und zerfallen daher sehr schnell weiter mit Übergangsraten $\gamma_{i,i-1}$. Diese Raten $\gamma_{i,i-1}$ modellieren die Linienverbreiterung der Seitenbandübergänge. Der zusätzlichen Linienverbreiterung durch spektrale Diffusion sowie durch weitere Dephasierungseffekte, wie etwa den Jahn-Teller-Effekt, wird durch eine allgemeine Dephasierungsrate γ^* Rechnung getragen.

Erfolgt bei einem NV-Zentrum der Übergang des angeregten Zustands in den Grundzustand nicht über die Nullphononenlinie, so wird ein rotverschobenes Photon emittiert. Das NV-Zentrum befindet sich anschließend in einem höheren vibronischen Niveau $|G_i\rangle$ des Grundzustands. Aufgrund der Vielzahl an vibronischen Leveln bildet sich ein breites Seitenband aus. Zusätzlich erfolgt aufgrund der kurzen Lebensdauer der höheren vibronischen Niveaus des Grundzustands stets ein Übergang in ein niedrigeres vibronisches Level. Daher wird neben einem Seitenbandphoton auch sehr schnell ein Phonon emittiert, daher die Bezeichnung phononisches Seitenband.

Das NV-Zentrum wird im Folgenden an eine Resonatormode gekoppelt. Dabei wird für jeden

Übergang eine eigene Kopplungskonstante g_i eingeführt. Die Emittter-Resonatorkopplung kann durch nachfolgenden Jaynes-Cummings-Energieoperator mathematisch beschrieben werden:

$$\hat{H}_{JC} = \sum_{i=0}^n \hbar\omega_i \hat{\sigma}_{i,i} + \hbar\omega_A \hat{\sigma}_{A,A} + \hbar\omega_R \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar \sum_{i=0}^n g_i \left(\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_{A,i} + \hat{\sigma}_{i,A}^\dagger \hat{a} \right) \quad (3.48)$$

mit der Kreisfrequenz ω_R der Resonatormode. \hat{a} ist der Operator der die Erzeugung von Resonatorphotonen und \hat{a}^\dagger der Operator der die Vernichtung von Resonatorphotonen beschreibt. $\hat{\sigma}_{n,m}$ ist für $n \neq m$ der Übergangoperator zwischen den Energieniveaus des NV-Zentrums und für $n = m$ der Besetzungsoperator des jeweiligen Energieniveaus. Der Erwartungswert $\langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle$ gibt folglich die Besetzung des angeregten Zustands an.

Wie bereits bei der Erarbeitung des dissipativen Jaynes-Cummings-Modell erläutert, wird zur Berücksichtigung der Verluste hier ebenfalls ein offenes Quantensystem mit Reservoir modelliert. Die Mastergleichung wird ebenso in der Born-Näherung und in der Markov-Näherung wie in der Literatur üblich in Abhängigkeit eines Dichteoperators $\hat{\rho}$ aufgestellt:

$$\dot{\rho} = \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\rho}, \hat{H}_{JC} \right] + \mathcal{L}_{\text{Verluste}}^{\text{Res}} + \mathcal{L}_{\text{Verluste}}^{\text{NV}} + \mathcal{L}_{\text{Relaxierung}}^{\text{NV}} + \mathcal{L}_{\text{Dephasierung}}^{\text{NV}} . \quad (3.49)$$

Der erste Term beschreibt die bereits im Jaynes-Cummings-Modell eingeführte kohärente Wechselwirkung zwischen Emittter und Resonatormode. Die weiteren Terme berücksichtigen Verluste sowie Verbreiterungseffekte.

Durch den zweiten Summanden in der Mastergleichung werden Resonatorverluste mit der Abklingrate κ der Resonatorphotonen berücksichtigt:

$$\mathcal{L}_{\text{Verluste}}^{\text{Res}} = \kappa \mathcal{L}[\hat{a}, \hat{\rho}] . \quad (3.50)$$

Der dritte Summand beschreibt Verluste der Polarisation bei den Übergängen vom angeregten Zustand in höhere vibronische Grundzustände:

$$\mathcal{L}_{\text{Verluste}}^{\text{NV}} = \sum_{i=0}^n \gamma_i \mathcal{L}[\hat{\sigma}_{A,i}, \hat{\rho}] . \quad (3.51)$$

Eine Linienverbreiterung tritt zum einen aufgrund der angesprochenen Relaxation zwischen den vibronischen Grundzuständen auf, berücksichtigt durch den vierten Summanden:

$$\mathcal{L}_{\text{Relaxation}}^{\text{NV}} = \sum_{i=1}^n \gamma_{i,i-1} \mathcal{L}[\hat{\sigma}_{i,i-1}, \hat{\rho}] . \quad (3.52)$$

Der fünfte Summand berücksichtigt schließlich noch die homogene Linienverbreiterung der Übergänge aufgrund der Dephasierung, die durch den Parameter γ^* charakterisiert wird:

$$\mathcal{L}_{\text{Dephasierung}}^{\text{NV}} = -\frac{\gamma^*}{4} \left(\left(\hat{\sigma}_{A,A} - \sum_{i=0}^n \hat{\sigma}_{i,i} \right) \hat{\rho} \left(\hat{\sigma}_{A,A} - \sum_{i=0}^n \hat{\sigma}_{i,i} \right) - \hat{\rho} \right) . \quad (3.53)$$

3 Emitter-Resonator-Kopplung

In den Summanden wurde die abkürzende Schreibweise mithilfe eines Lindblad-Operators verwendet, der für einen beliebigen Operator \hat{A} wie folgt definiert ist:

$$\mathcal{L}[\hat{A}, \hat{\rho}] = \hat{A}\hat{\rho}\hat{A}^\dagger - \frac{1}{2} \left(\hat{A}^\dagger\hat{A}\hat{\rho} + \hat{\rho}\hat{A}^\dagger\hat{A} \right). \quad (3.54)$$

Mithilfe der erarbeiteten Mastergleichung (3.49) kann der zeitliche Verlauf der Besetzungen sämtlicher Zustände des NV-Zentrums sowie der zeitliche Verlauf der kohärenten Wechselwirkungen vollständig beschrieben werden. Unter Beachtung der Eigenschaften der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten NV-Zentren und hergestellten Resonatoren können jedoch noch weitere Vereinfachungen vorgenommen werden. Die Abklingrate κ der Resonatorphotonen und die spontane Emissionsrate γ der NV-Zentren sind wie bereits in vorangegangenen Abschnitten erläutert stets wesentlich größer als die Kopplungsraten g_i . Die hohe Rate κ garantiert, dass ein in den Resonator emittiertes Photon diesen verlassen hat, bevor das nächste Photon in den Resonator gelangt. Im Folgenden wird sich daher auf den Fall eines einzigen Photons im Resonator beschränkt. Ferner können aufgrund der Dominanz der Raten κ und γ über die Kopplungsraten g_i kohärente Wechselwirkungen zwischen Resonatormode und NV-Zentrum, wie etwa mathematisch durch Terme wie $\langle \hat{\sigma}_{i,j}^\dagger \hat{a} \rangle$ beschrieben, in adiabatischer Näherung vernachlässigt werden. Die zeitliche Ableitung solcher Beiträge kann somit zu Null gesetzt werden.

Mithilfe dieser Vereinfachungen können folgende Ratengleichungen für den Erwartungswert der Besetzung des angeregten Zustands des NV-Zentrums $\langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle$ und den Erwartungswert der Anzahl der Photonen im Resonator $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ aufgestellt werden [149]:

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle = -(\kappa + R_0) \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle + \sum_{i=0}^n R_i \langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle \quad (3.55)$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle = R_0 \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle - \left(\gamma + \sum_{i=0}^n R_i \right) \langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle. \quad (3.56)$$

Für die zugehörigen Kopplungsraten gilt:

$$R_0 = \frac{4g_0^2}{\kappa + \gamma + \gamma^*} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_0}{\kappa + \gamma + \gamma^*} \right)^2} \quad (3.57)$$

$$R_i = \frac{4g_i^2}{\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_i}{\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*} \right)^2} \quad (3.58)$$

mit den Verstimmungen $\Delta_i = \omega_i - \omega_R$, der Kreisfrequenz ω_R der Resonatormode, der Kreisfrequenz ω_i des i -ten optischen Übergangs des NV-Zentrums und der absoluten spontanen Emissionsrate $\gamma = \gamma_0 + \dots + \gamma_n$.

In Abbildung 3.2b ist eine analoge Darstellung des Systems und seinen durch die Ratengleichungen beschriebenen Wechselwirkungen dargestellt. Man kann sich das NV-Zentrum und den Resonator nach Auffèves et al. [202] als System gekoppelter Boxen vorstellen. Die NV-Box repräsentiert dabei die Besetzung $\langle \hat{\sigma}_{A,A} \rangle$ des angeregten Zustands und die Resonatorbox die Anzahl $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ der Photonen im Resonator. Das NV-Zentrum kann Photonen mit der Rate γ spontan

emittieren, der Resonator Photonen mit der Rate κ an das umgebende Reservoir abgeben. Die Raten R_0 und R_i beschreiben die effektiven Kopplungsraten zwischen den beiden Boxen.

Im Folgenden werden exemplarisch einige mögliche Vorgänge in diesem Modell gekoppelter Boxen beschrieben. Wird das NV-Zentrum durch die nicht-resonante Laserbestrahlung angeregt, so kann der Emittter entweder spontan zerfallen und ein Photon mit der Rate γ an das Reservoir abgeben oder ein Photon in die Resonatormode emittieren. Wird das an den Resonator gekoppelte Photon über die Nullphononenlinie emittiert, so kann es anschließend entweder den Resonator mit einer Rate κ verlassen oder vom NV-Zentrum mit einer über die Rate R_0 festgelegten Wahrscheinlichkeit reabsorbiert werden. Erfolgt die Emission in den Resonator hingegen über einen anderen Übergang in einen der vibronischen Zustände des Grundzustands, so ist dieser Prozess aufgrund der zusätzlichen Emission eines Phonons energetisch irreversibel und das eingekoppelte Photon verlässt den Resonator mit der Rate κ . Folglich kann die Rate R_0 dem ZPL-Übergang zugeordnet werden und die Raten R_i mit $i = 1, \dots, n$ den Übergängen über das vibronische Seitenband. Im Modell kann ein Photon somit mit einer Gesamtrate von $\sum_{i=0}^n R_i$ in den Resonator eingekoppelt werden, aber nur mit der Rate R_0 vom NV-Zentrum reabsorbiert werden. Lediglich der Zerfall über die Nullphononenlinie bietet einen reversiblen Zerfallskanal.

Generalisierter Purcell-Faktor

In Abschnitt 3.3 wurde der Purcell-Faktor als geeignetes Maß für die relative Änderung der spontanen Emissionsrate durch Kopplung eines Emittters an eine Resonatormode eingeführt. Von Auffèves et al. [200] wurde das Konzept eines generalisierten Purcell-Faktors bei Kopplung eines rein durch Dephasierung verbreiterten breitbandigen Emittters an einen Resonator vorgeschlagen. Im Folgenden wird in Analogie ein generalisierter Purcell-Faktor unter Berücksichtigung von Dephasierung und vibronischen Grundzuständen basierend auf den Ergebnissen des Raten-gleichungsmodells erarbeitet.

Im Purcell-Regime und der damit verbundenen Dominanz der Parameter κ und γ über die Kopplungskonstanten g_i kann die Kopplung eines Emittters an einen Resonator als zusätzlicher Verlustkanal modelliert werden. Der angeregte Zustand des Emittters zerfällt somit mit einer neuen Rate $\gamma + \sum_{i=0}^n R_i$. Für die durch die Kopplung an eine Resonatormode hervorgerufene Änderung der spontanen Emissionsrate gilt folglich:

$$\Delta\gamma = \sum_{i=0}^n R_i . \quad (3.59)$$

Wird die Definition des Purcell-Faktors aus Gleichung (3.31) übertragen, so ergibt sich für den generalisierten Purcellfaktor F^* :

$$F^* = \frac{\Delta\gamma}{\gamma} = \frac{\sum_{i=0}^n R_i}{\gamma} . \quad (3.60)$$

Die generalisierten Purcell-Faktoren der einzelnen Übergänge können analog festgelegt werden:

$$F_0^* = \frac{R_0}{\gamma} = \frac{4g_0^2}{\gamma \cdot (\kappa + \gamma + \gamma^*)} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_0}{\kappa + \gamma + \gamma^*}\right)^2} \quad (3.61)$$

$$F_i^* = \frac{R_i}{\gamma} = \frac{4g_i^2}{\gamma \cdot (\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*)} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_i}{\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*}\right)^2} \cdot \quad (3.62)$$

Der generalisierte Purcell-Faktor aller Übergänge kann wie anhand von Gleichung (3.60) ersichtlich über die Summe aller Purcell-Faktoren der einzelnen Übergänge berechnet werden.

Den bekannten Ausdruck für den Purcell-Faktor im Resonanzfall aus Gleichung (3.31), $F = 4g^2/(\kappa\gamma)$, erhält man durch Annahme einer Dephasierungsrate von $\gamma^* = 0$ sowie eines unmittelbaren Übergangs der höheren vibronischen Niveaus in den Grundzustand mit $\gamma_{i,i-1} = 0$. Ferner muss die Rate κ in (3.31), die nur die Breite der Mode beschreibt, durch die Summe $\kappa + \gamma$ ersetzt werden. Dies entspricht der Ersetzung des bisherigen Gütefaktors $Q = \omega_R/\kappa$ durch einen neuen generalisierten Gütefaktor $Q^* = \omega_R/(\kappa + \gamma)$ [200].

4 Zweidimensionale photonische Kristalle

Teile dieses Kapitels sind, wörtlich oder auch modifiziert, aus [90] übernommen.

In diesem Kapitel wird zunächst ausgehend von den Maxwellgleichungen die grundlegende Theorie der Lichtausbreitung in Strukturen mit periodischer Variation des Brechungsindex, die auch als photonische Kristalle oder auch photonische Kristallstrukturen bezeichnet werden, erarbeitet. Eine Wellengleichung zur Beschreibung der Lichtausbreitung wird aufgestellt, die die Bestimmung der Eigenfunktionen in photonischen Kristallstrukturen sowie die Analyse der Eigenfunktionen insbesondere unter Berücksichtigung der vorliegenden Symmetrien erlaubt. Im Anschluss daran wird das Konzept der photonischen Bandstruktur eingeführt sowie eine Simulationsmethodik beschrieben, die die numerische Bestimmung der Bandstruktur ermöglicht. In diesem Rahmen wird auch auf das Konzept der photonischen Bandlücke eingegangen, deren Existenz die Funktionsfähigkeit von Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen maßgeblich bedingt. Im letzten Teil des Kapitels werden durch Punktdefekte in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen erzeugte Resonatoren hoher Güte und außerordentlich kleiner Modenvolumina eingeführt. Hierbei wird insbesondere auf die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten und untersuchten Resonatortypen eingegangen und darüber hinaus deren simulationsgestützte Optimierung mithilfe des Prinzips des *gentle confinement* dargelegt.

4.1 Wellengleichung für photonische Kristalle

Die theoretische Beschreibung der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in photonischen Kristallstrukturen beruht auf den vier Maxwellgleichungen, die James Clerk Maxwell bis 1864 erarbeitete. Die nachfolgenden Überlegungen mithilfe der Elektrodynamik lassen zahlreiche Analogien zur Quantenmechanik in periodischen Potenzialen erkennen. Statt eines periodischen Potenzials $V(\vec{r})$ wird im Folgenden eine periodische dielektrische Funktion $\varepsilon(\vec{r})$ eingeführt. Der maßgebliche Operator ist statt eines Hamiltonoperators ein Differentialoperator Θ . Statt Bloch-Funktionen $\vec{\Psi}_{\vec{k},n}$ werden Eigenfunktionen $\vec{H}_{\vec{k},n}$ betrachtet, die auch als Moden der photonischen Kristallstruktur bezeichnet werden. Die Lichtausbreitung selbst wird durch eine hermitesche Operatorgleichung beschrieben. Diese Wellengleichung photonischer Kristallstrukturen wird im Folgenden hergeleitet und deren Eigenfunktionen unter Ausnutzung der in den Nanostrukturen vorliegenden Symmetrien näher charakterisiert. Die nachfolgenden theoretischen Überlegungen sind angelehnt an [89, 203].

4.1.1 Elektromagnetismus als Eigenwertproblem

Die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen und somit insbesondere von Licht in dielektrischen Materialien wird durch die vier Maxwellgleichungen beschrieben [204]:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad (4.1) \qquad \vec{\nabla} \times \vec{E} + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0 \quad (4.3)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (4.2) \qquad \vec{\nabla} \times \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{j} \quad (4.4)$$

wobei \vec{E} und \vec{H} die elektrische bzw. magnetische Feldstärke, \vec{D} und \vec{B} das elektrische Verschiebungsfeld bzw. die magnetische Flussdichte, ρ die Ladungsdichte und \vec{j} die Stromdichte darstellen. Bei Gleichung (4.1) handelt es sich um das Gaußsche Gesetz, bei Gleichung (4.2) um das Gaußsche Gesetz der Magnetostatik, (4.3) stellt das Induktionsgesetz von Faraday dar und (4.4) eine erweiterte Form des Ampèreschen Gesetzes. Im Allgemeinen stehen das Verschiebungsfeld \vec{D} und das elektrische Feld \vec{E} in folgendem Zusammenhang [205]:

$$\frac{D_i}{\varepsilon_0} = \sum_j \varepsilon_{ij} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk} E_j E_k + \mathcal{O}(E^3) \quad (4.5)$$

mit der Vakuum-Permittivität $\varepsilon_0 = 8,86 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$.

Die theoretischen Betrachtungen in diesem Kapitel sollen die Lichtausbreitung in von Luft umgebenen zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in Diamant beschreiben. Es werden daher folgende Annahmen getroffen:

- Diamant ist ein dielektrisches Material, d. h. es gibt keine freien Ladungen oder Ströme. Daher gilt im Folgenden: $\rho = 0$ und $\vec{j} = 0$.
- Diamant wird als makroskopisches und isotropes Material angenommen, sodass die relative Permittivität eine skalare Funktion $\varepsilon(\vec{r}, \omega)$ ist.
- Die Feldstärken werden als klein angenommen, sodass zwischen \vec{D} und \vec{E} bzw. \vec{H} und \vec{B} jeweils ein linearer Zusammenhang besteht. Somit können etwa in Gleichung (4.5) alle Terme χ_{ijk} der Ordnung 1 und höher vernachlässigt werden.
- Die Dispersion in Diamant wird vernachlässigt, es gilt somit $\varepsilon(\vec{r}, \omega) = \varepsilon(\vec{r})$. Ferner wird der Diamant als transparent und somit absorptionsfrei angenommen, $\varepsilon(\vec{r})$ ist folglich reellwertig und positiv.

Die für Diamant getroffenen Annahmen gelten selbsterklärend auch für Luft als Umgebungsmaterial der untersuchten photonischen Kristallstrukturen in Diamant. Aus diesen Annahmen hervorgehend ergeben sich nachfolgende Relationen:

$$\vec{D}(\vec{r}) = \varepsilon_0 \varepsilon(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}) \qquad \vec{B}(\vec{r}) = \mu_0 \mu(\vec{r}) \vec{H}(\vec{r}) \quad (4.6)$$

mit der Permeabilität $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H/m}$. Bei vielen Dielektrika, insbesondere bei Diamant, ist $\mu(\vec{r}) \approx 1$. Für den Brechungsindex n gilt somit $n = \sqrt{\varepsilon\mu} = \sqrt{\varepsilon}$ und die Maxwellgleichungen ergeben sich folglich zu:

$$\vec{\nabla} \cdot (\varepsilon(\vec{r}) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t)) = 0 \quad (4.7) \quad \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) + \mu_0 \frac{\partial \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad (4.9)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H}(\vec{r}, t) = 0 \quad (4.8) \quad \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) - \varepsilon_0 \varepsilon(\vec{r}) \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0. \quad (4.10)$$

Die Gleichungen (4.7) und (4.8) besagen, dass elektrisches und magnetisches Feld frei von Quellen sind. Folglich können das magnetische und das elektrische Feld aus transversal zur Ausbreitungsrichtung polarisierten Wellen konstruiert werden. Da die Maxwellgleichungen lineare Gleichungen sind, können die Felder darüber hinaus nach harmonischen Moden entwickelt werden. Zeitabhängigkeit und räumlicher Anteil können somit separiert werden:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r})e^{-i\omega t} \quad \vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{H}(\vec{r})e^{-i\omega t}. \quad (4.11)$$

Die beiden letzten Maxwellgleichungen (4.9) und (4.10) liefern zudem nach Einsetzen von Gleichung (4.11) einen direkten Zusammenhang zwischen der elektrischen und der magnetischen Feldstärke, sodass gilt:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}) - i\omega\mu_0\vec{H}(\vec{r}) = 0 \quad \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) + i\omega\varepsilon_0\varepsilon(\vec{r})\vec{E}(\vec{r}) = 0. \quad (4.12)$$

Dieses System gekoppelter Differenzialgleichungen lässt sich entkoppeln. Die Gleichungen (4.12) können wie folgt umgeformt werden:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}) = i\omega\mu_0\vec{H}(\vec{r}) \quad (4.13)$$

$$\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r})) \right) = -i\omega\varepsilon_0 (\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r})). \quad (4.14)$$

Durch Einsetzen von (4.13) in (4.14) ergibt sich schließlich die Wellengleichung für die magnetische Feldstärke $\vec{H}(\vec{r})$:

$$\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r})) \right) = \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \vec{H}(\vec{r}). \quad (4.15)$$

Analog kann die entsprechende Wellengleichung für die elektrische Feldstärke $\vec{E}(\vec{r})$ aufgestellt werden. Diese ergibt sich zu:

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}) = \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \varepsilon(\vec{r})\vec{E}(\vec{r}). \quad (4.16)$$

Durch die zu untersuchende photonische Kristallstruktur wird die Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r})$ vorgegeben. Ziel ist es nun, die Moden $\vec{H}(\vec{r})$ bzw. $\vec{E}(\vec{r})$ als Eigenfunktionen der Wellengleichung sowie die zugehörigen Frequenzen ω zu ermitteln. Im Folgenden werden ohne Einschränkung die Moden der Wellengleichung des magnetischen Feldes $\vec{H}(\vec{r})$ mithilfe von Gleichung (4.15) bestimmt. Unter Verwendung der Rotationsgleichungen (4.12) können anschließend auch die Moden des elektrischen Feldes über folgende Relation berechnet werden:

$$\vec{E}(\vec{r}) = -\frac{1}{i\omega\varepsilon_0\varepsilon(\vec{r})} \left(\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) \right) . \quad (4.17)$$

Gleichung (4.15) stellt mathematisch gesehen ein Eigenwertproblem dar. Ist eine Lösung $\vec{H}(\vec{r})$ gefunden und werden darauf die Operationen aus Gleichung (4.15) angewendet, so ergibt sich wiederum die Mode $\vec{H}(\vec{r})$ multipliziert mit einer Konstanten. Eine solche Lösung wird als Eigenfunktion, die Konstante als Eigenwert bezeichnet. Um Gleichung (4.15) noch deutlicher als Eigenwertproblem herauszustellen, kann die Wellengleichung mithilfe eines linearen Operators Θ wie folgt dargestellt werden:

$$\Theta\vec{H}(\vec{r}) = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{H}(\vec{r}) \quad (4.18)$$

mit der Festlegung des Operators Θ durch

$$\Theta\vec{H}(\vec{r}) \doteq \vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) \right) . \quad (4.19)$$

Eigenschaften der Moden als Eigenfunktionen von Θ

In diesem Abschnitt wird gezeigt, dass der Operator Θ hermitesch ist und in Folge dessen die zu den Moden gehörenden Frequenzen ω reellwertig und positiv sind. Ferner folgt aus der Hermitizität des Operators, dass Eigenfunktionen zu verschiedenen Eigenwerten orthogonal sind. Anhand von Gleichung (4.18) lässt sich erkennen, dass Θ darüber hinaus ein linearer Operator ist. Ist es gelungen, zwei entartete Moden $\vec{H}_1(\vec{r})$ und $\vec{H}_2(\vec{r})$ zu bestimmen, so ist auch jede Linearkombination $c_1\vec{H}_1(\vec{r}) + c_2\vec{H}_2(\vec{r})$ ebenfalls Lösung der Wellengleichung.

Für die weitere Betrachtung seien zunächst allgemein \vec{F} und \vec{G} zwei beliebige Vektorfelder, die im Unendlichen verschwinden. Ein Operator O heißt hermitesch, falls die Gleichung $(\vec{F}, O\vec{G}) = (O\vec{F}, \vec{G})$ erfüllt ist. Dabei wird (\cdot, \cdot) als das innere Produkt bezeichnet, das für zwei Vektorfelder $\vec{F}(\vec{r})$ und $\vec{G}(\vec{r})$ wie folgt festgelegt ist:

$$(\vec{F}, \vec{G}) \doteq \int_V \vec{F}^*(\vec{r})\vec{G}(\vec{r}) d^3\vec{r} . \quad (4.20)$$

Aus der Definition des inneren Produkts folgt unmittelbar, dass $(\vec{F}, \vec{G}) = (\vec{G}, \vec{F})^*$ sowie darüber hinaus $(\vec{F}, \vec{F}) \geq 0$ gilt. Das innere Produkt (\vec{F}, \vec{F}) ist somit insbesondere reellwertig. Ferner kann $\vec{F}(\vec{r})$ so normiert werden, dass $(\vec{F}, \vec{F}) = 1$ gilt. Eine derartige Normierung ist für die Moden $\vec{H}(\vec{r})$ als Eigenfunktionen der Wellengleichung möglich, da Θ ein linearer Operator ist. Derart normierte Moden lassen sich leichter berechnen, allerdings ist der Vorfaktor beispielsweise bei

der Berechnung der Feldenergien zu berücksichtigen.

Im Folgenden wird zunächst gezeigt, dass Θ ein hermitescher Operator ist. Mithilfe des Gaußschen Integralsatzes gilt¹:

$$\begin{aligned}
 \oint_{\partial V} (\vec{F} \times \vec{G}) \, d^2\vec{r} &\stackrel{\text{Gauss}}{=} \int_V \vec{\nabla} \cdot (\vec{F} \times \vec{G}) \, d^3\vec{r} \\
 \oint_{\partial V} (\vec{F} \times \vec{G}) \, d^2\vec{r} &= \int_V \vec{G} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{F}) - \vec{F} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{G}) \, d^3\vec{r} \\
 \iff \int_V \vec{F} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{G}) \, d^3\vec{r} &= \int_V \vec{G} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{F}) \, d^3\vec{r} - \oint_{\partial V} (\vec{F} \times \vec{G}) \, d^2\vec{r}. \quad (4.21)
 \end{aligned}$$

Das letzte Ringintegral in (4.21) kann aufgrund der an \vec{F} , \vec{G} und V gestellten Forderungen vernachlässigt werden. Folglich gilt:

$$\begin{aligned}
 (\vec{F}, \Theta \vec{G}) &= \int_V \vec{F}^* \cdot \left(\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{G} \right) \right) \, d^3\vec{r} \\
 &\stackrel{(4.21)}{=} \int_V \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{G} \right) \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{F})^* \, d^3\vec{r} \\
 &\stackrel{(4.21)}{=} \int_V \left(\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{F} \right) \right)^* \cdot \vec{G} \, d^3\vec{r} \\
 (\vec{F}, \Theta \vec{G}) &= (\Theta \vec{F}, \vec{G}). \quad (4.22)
 \end{aligned}$$

Der Operator Θ ist somit hermitesch. Darüber hinaus kann die Wellengleichung (4.18) mithilfe der Definition des inneren Produkts umgeschrieben werden zu:

$$\begin{aligned}
 \Theta \vec{H} &= \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \vec{H} \\
 \implies (\vec{H}, \Theta \vec{H}) &= \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 (\vec{H}, \vec{H}) \quad (4.23)
 \end{aligned}$$

$$\implies (\vec{H}, \Theta \vec{H})^* = \left(\frac{\omega^2}{c^2} \right)^* (\vec{H}, \vec{H}). \quad (4.24)$$

Unter Ausnutzung der in Gleichung (4.22) gezeigten Hermitezität von Θ gilt folglich $\left(\frac{\omega^2}{c^2} \right)^* = \left(\frac{\omega^2}{c^2} \right)$, das Quadrat ω^2 der Frequenz einer Mode ist somit reellwertig. Wird darüber hinaus $\vec{F} = \vec{G} = \vec{H}$ in Gleichung (4.22) gesetzt, so gilt:

$$\left(\frac{\omega^2}{c^2} \right) (\vec{H}, \vec{H}) = (\vec{H}, \Theta \vec{H}) = \int_V \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \left| \nabla \times \vec{H} \right|^2 \, d^3\vec{r}. \quad (4.25)$$

Da zusätzlich $\varepsilon(\vec{r})$ als positiv und reellwertig vorausgesetzt wurde folgt, dass ω^2 positiv und die Frequenz ω der Mode somit reellwertig ist. Mit Gleichung (4.23) folgt darüber hinaus für zwei

¹Hier sei vorausgesetzt: $\vec{F}, \vec{G} \in \mathcal{C}^1(V, \mathbb{C}^3)$, V ist die größtmögliche kompakte Menge $V \subseteq \mathbb{C}^3$. $\mathcal{C}^1(V, \mathbb{C}^3)$ bezeichnet den Raum der stetig differenzierbaren Funktionen von V nach \mathbb{C}^3 . Ferner wird die Identität $\vec{\nabla} \cdot (\vec{F} \times \vec{G}) = \vec{G} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{F}) - \vec{F} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{G})$ verwendet.

nicht entartete Moden $\vec{H}_1(\vec{r})$ und $\vec{H}_2(\vec{r})$ mit Frequenzen ω_1 und ω_2 :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\omega^2}{c^2}\right) (\vec{H}_2, \vec{H}_1) &= (\vec{H}_2, \Theta \vec{H}_1) \\ \implies \omega_1^2 (\vec{H}_2, \vec{H}_1) &= c^2 (\vec{H}_2, \Theta \vec{H}_1) \stackrel{(4.23)}{=} c^2 (\Theta \vec{H}_2, \vec{H}_1) = \omega_2^2 (\vec{H}_2, \vec{H}_1) \\ \implies (\omega_1^2 - \omega_2^2) (\vec{H}_2, \vec{H}_1) &= 0 . \end{aligned} \quad (4.26)$$

Für zwei nicht entartete Moden gilt folglich $(\vec{H}_1, \vec{H}_2) = 0$. Zwei zu unterschiedlichen Frequenzen gehörende Moden sind somit orthogonal, wohingegen entartete Moden nicht zwangsweise orthogonal sein müssen.

Skalierungsinvarianz der Wellengleichung

In diesem Abschnitt wird der Frage nachgegangen, wie sich die Wellengleichung und deren Lösungen bei einer Skalierung zu größeren oder kleineren Strukturen verhalten. Als charakteristische Größe für photonische Kristallstrukturen wird die Gitterkonstante a betrachtet. Im Folgenden wird hypothetisch eine Struktur angenommen, die um einen Faktor s gestreckt oder gestaucht ist. Für die Dielektrizitätsfunktion dieser Struktur gilt somit $\varepsilon'(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r}/s)$. In Folge dessen gilt für den neuen Ortsvektor $\vec{r}' = s \cdot \vec{r}$ und für den Nabla-Operator $\vec{\nabla}' = \vec{\nabla}/s$. Die Wellengleichung (4.15) für das um s skalierte System ergibt sich zu:

$$s\vec{\nabla}' \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r}'/s)} \left(s\vec{\nabla}' \times \vec{H}(\vec{r}'/s) \right) \right) = \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \vec{H}(\vec{r}'/s) . \quad (4.27)$$

Mit den Substitutionen $\varepsilon(\vec{r}'/s) = \varepsilon'(\vec{r}')$ und $\vec{H}(\vec{r}'/s) = \vec{H}'(\vec{r}')$ sowie durch Multiplizieren mit $1/s^2$ ergibt sich die nachfolgende Wellengleichung:

$$\vec{\nabla}' \times \left(\frac{1}{\varepsilon'(\vec{r}')} \left(\vec{\nabla}' \times \vec{H}'(\vec{r}') \right) \right) = \left(\frac{\omega}{sc} \right)^2 \vec{H}'(\vec{r}') . \quad (4.28)$$

Diese neue Wellengleichung weist die gleiche Struktur auf wie die Wellengleichung (4.15) des unskalierten Systems, allerdings mit Moden $\vec{H}'(\vec{r}') = \vec{H}(\vec{r}'/s)$ und zugehörigen skalierten Frequenzen $\omega' = \omega/s$. Es genügt folglich, die Moden einer photonischen Kristallstruktur für eine einzige beliebige Gitterkonstante a zu bestimmen. Die Moden einer Struktur mit größerer oder kleinerer Gitterkonstante sowie die zugehörigen Frequenzen ergeben sich schlicht durch Skalieren. Die Wellengleichung (4.15) ist somit skalierungsinvariant.

Eine weitere vorteilhafte Konsequenz der Skalierungsinvarianz ist, dass auch die Werte von ε skaliert werden können. Kennt man die Eigenfunktionen für eine photonische Kristallstruktur mit Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r})$ und betrachtet einen anderen Kristall mit Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon'(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r})/s^2$, so gilt mit Gleichung (4.15):

$$\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon'(\vec{r})} \left(\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) \right) \right) = \left(\frac{s\omega}{c} \right)^2 \vec{H}(\vec{r}) . \quad (4.29)$$

Die photonische Kristallstruktur mit veränderter Dielektrizitätszahl weist die gleichen Moden

auf, lediglich die Frequenzen sind durch $\omega' = s\omega$ skaliert. Ist die Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r})$ beispielsweise um einen Faktor vier gestreckt, so sind die Moden $\vec{H}(\vec{r})$ als Eigenfunktionen der Wellengleichung unverändert, die Frequenzen der Moden allerdings halb so groß.

Die gezeigte Skalierungsinvarianz ist für die Simulation und Herstellung photonischer Kristallstrukturen von entscheidender Bedeutung. Die aus der Simulation einer Struktur mit beliebiger Gitterkonstante a gewonnenen Erkenntnisse können ohne großen Aufwand auf skalierte Strukturen übertragen werden. Im Anschluss an eine erfolgte Simulation kann die Gitterkonstante a beispielsweise so angepasst werden, dass die Frequenz einer Resonatormode der später hergestellten Struktur auf den Wellenlängenbereich der Nullphononenlinie des NV-Zentrums bei 637 nm abgestimmt ist. Ferner lassen sich infolge der Skalierungsinvarianz auch Erkenntnisse aus Studien zu photonischen Kristallen in anderen Materialsystemen wie etwa Silizium/Luft auf Diamant/Luft-Systeme problemlos übertragen.

4.1.2 Charakterisierung der Moden durch Ausnutzen von Symmetrien

Wie bereits in den vorangegangenen Abschnitten erläutert wurde, sind die Moden $\vec{H}(\vec{r})$ die Lösungen der erarbeiteten Wellengleichung (4.15). Zwei nicht entartete Moden sind stets orthogonal, ferner sind die zugehörigen Frequenzen ω positiv und reellwertig. Photonische Kristallstrukturen weisen als periodische Strukturen, periodisch im Sinne einer periodischen Variation von $\varepsilon(\vec{r})$, darüber hinaus zahlreiche Symmetrien auf, die die weitere Charakterisierung der Moden erlauben. Im Folgenden wird auf die Translationssymmetrie, die Rotationssymmetrie und auch die Spiegelsymmetrie näher eingegangen.

Translationssymmetrie und Brillouinzone

Bei geeigneten Festkörpern liegt eine Gitterstruktur mit periodischer Dichtefunktion $\rho(\vec{r}) = \rho(\vec{r} + \vec{R})$ vor, wobei für den dreidimensionalen die Periode beschreibenden Gittervektor \vec{R} gilt: $\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3$ mit $n_i \in \mathbb{Z}$ und der Basis $\{\vec{a}_i\}$ des primitiven Gitters. Aufgrund dieser Periodizität lässt sich $\rho(\vec{r})$ nach Vektoren \vec{G} in einer Fourierreihe entwickeln:

$$\rho(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} \rho_{\vec{G}} e^{i\vec{G}\vec{r}} . \quad (4.30)$$

Der Vektor \vec{G} ist durch Vektoren \vec{g}_i mit $\vec{G} = l\vec{g}_1 + m\vec{g}_2 + n\vec{g}_3$ mit $l, m, n \in \mathbb{Z}$ festgelegt. Um die diskrete Translationssymmetrie des Gitters zu gewährleisten, muss für diese Vektoren gelten: $\vec{g}_i \cdot \vec{a}_j = 2\pi\delta_{ij}$ mit dem Kroneckersymbol δ_{ij} . Die so definierte Basis $\{\vec{g}_i\}$ spannt das sogenannte reziproke Gitter auf.

Ebenso wie bei Festkörpern kann auch bei photonischen Kristallstrukturen eine vorhandene diskrete Translationssymmetrie ausgenutzt werden. Mathematisch lässt sich die periodische Struktur analog durch eine Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r})$ statt durch eine Dichtefunktion $\rho(\vec{r})$ beschreiben. Im Folgenden wird nach [203] und [206] die diskrete Translationssymmetrie zunächst in eine Richtung, ohne Einschränkung die z -Richtung, betrachtet. Sei $R = l \cdot a$ mit $l \in \mathbb{Z}$ die Periodizität

in diese Richtung und $T_{\vec{R}}$ der zugehörige Translationsoperator mit $T_{\vec{R}} = T_{R\hat{z}}$, so gilt:

$$T_{\vec{R}}\varepsilon(\vec{r}) = \varepsilon(\vec{r} - \vec{R}) = \varepsilon(\vec{r}) . \quad (4.31)$$

Aufgrund der Translationssymmetrie muss der Operator Θ mit dem eingeführten Translationsoperator $T_{\vec{R}}$ kommutieren, $[T_{\vec{R}}, \Theta] = 0$. Die Moden von Θ müssen somit gleichzeitig auch Eigenfunktionen des Translationsoperators sein. Diese Eigenfunktionen sind wie gewohnt ebene Wellen:

$$T_{R\hat{z}}e^{ikz} = e^{ik(z-R)} = e^{-ikR} \cdot e^{ikz} . \quad (4.32)$$

Moden mit Wellenzahl k und $k' = k + n \cdot (2\pi/a)$, $n \in \mathbb{Z}$, haben den gleichen Eigenwert e^{-ikR} . Der Faktor $(2\pi/a) = b$ wird als reziproker Gittervektor im k -Raum bezeichnet. Jede Superposition solcher entarteter Eigenfunktionen ist selbst wieder eine Eigenfunktion. Daher können die ursprünglichen Moden in folgende Form gebracht werden:

$$\vec{H}_k(\vec{r}) = \sum_n \vec{c}_{k,n}(x, y) e^{i(k+nb)z} = \vec{u}_k(\vec{r}) \cdot e^{ikz} \quad (4.33)$$

mit Entwicklungskoeffizienten $\vec{c}_{k,n}$ die durch Lösen der Maxwellgleichungen festgelegt sind und der periodischen Funktion $\vec{u}_k(\vec{r}) = \vec{u}_k(x, y, z + nb)$. Eine derartige Linearkombination ebener Wellen heißt Bloch-Welle. Die Tatsache, dass die Eigenfunktionen des periodischen Gitters durch ebene Wellen amplitudenmoduliert mit einer periodischen Funktion $\vec{u}_k(\vec{r})$ dargestellt werden können, wird üblicherweise als Bloch-Theorem bezeichnet.

Moden, deren Wellenzahl k sich nur um ein ganzzahliges Vielfaches des reziproken Gittervektors unterscheiden sind identisch. Sie haben daher den gleichen Eigenwert und somit auch die gleiche Modenfrequenz $\omega(k + n \cdot b) = \omega(k)$. Daher genügt es, die Wellenzahl k im Wertebereich von $-\pi/a < k \leq \pi/a$ zu betrachten. Dieser Bereich von sich nicht wiederholenden k -Werten im reziproken Raum wird als Brillouinzone bezeichnet.

Analog kann die Translationssymmetrie auch in drei Dimensionen betrachtet werden. In diesem Falle ist die photonische Kristallstruktur invariant unter Verschiebungen um einen Gittervektor $\vec{R} = l\vec{a}_1 + m\vec{a}_2 + n\vec{a}_3$ mit $l, m, n \in \mathbb{Z}$ und der Basis $\{\vec{a}_i\}$ des primitiven Gitters. Analog können reziproke Gittervektoren aufgestellt werden, die die reziproke Basis $\{\vec{b}_i\}$ derart bilden, dass wie zuvor erläutert $\vec{b}_i \cdot \vec{a}_j = 2\pi\delta_{ij}$ gilt. Die Moden des dreidimensionalen Systems sind ebenfalls Bloch-Moden $\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r})$ mit Wellenvektor $\vec{k} = k_1\vec{b}_1 + k_2\vec{b}_2 + k_3\vec{b}_3$ mit $k_1, k_2, k_3 \in \mathbb{Z}$. Die Lösungen des Eigenwertproblems ergeben sich mit der Modulationsfunktion $\vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) = \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r} + \vec{R})$ für alle Gittervektoren \vec{R} zu:

$$\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r}) = \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}} . \quad (4.34)$$

Der Wellenvektor \vec{k} liegt dabei wie bereits im eindimensionalen Fall dargelegt innerhalb der Brillouinzone und kennzeichnet eine Mode $\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r})$ von Θ mit Frequenz $\omega(\vec{k})$. Ist $\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r})$ Eigenfunktion von Θ , so ist bei vorliegender Translationssymmetrie auch automatisch $T_{\vec{R}}\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r})$ Eigenfunktion

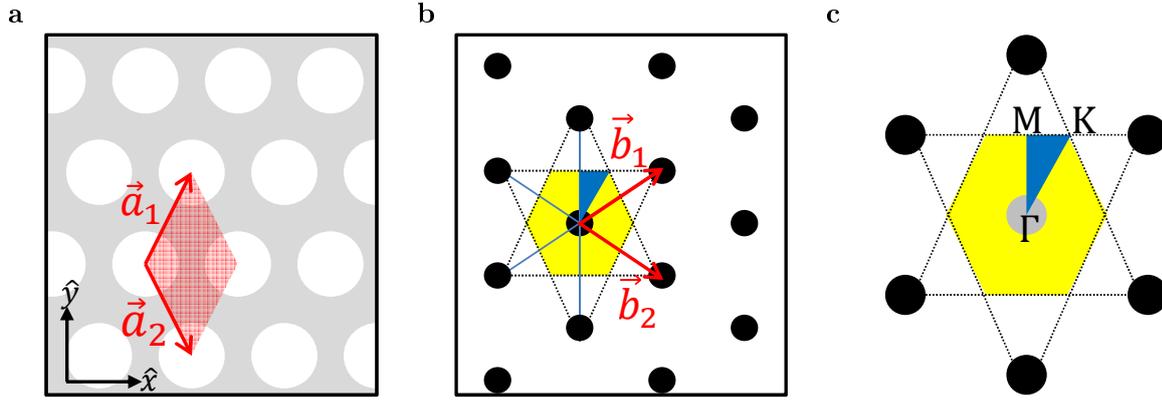


Abbildung 4.1: Zweidimensionales hexagonales Gitter. (a) Im realen Raum wird die primitive Einheitszelle (rot) durch die Gittervektoren \vec{a}_1 und \vec{a}_2 aufgespannt. (b) Im reziproken Raum spannen die reziproken Gittervektoren \vec{b}_1 und \vec{b}_2 das reziproke Gitter auf. Dieses ist gegenüber dem realen Gitter um 90° gedreht. Die Brillouinzone (gelb) ist ebenfalls hexagonal und wiederum um 90° gegenüber dem reziproken Gitter im k -Raum gedreht. (c) Die erste Brillouinzone (blau) wird durch die Punkte Γ , M und K im reziproken Raum aufgespannt.

mit gleichem Eigenwert und gleicher Frequenz $\omega(\vec{k} + \vec{R}) = \omega(\vec{k})$.

Zur periodischen Variation des Brechungsindex wurden mehrere zweidimensionale photonische Kristallgitter vorgeschlagen, wie etwa eine quadratische, hexagonale oder auch wabenartige Anordnung von Luftzylindern im homogenen Umgebungsmaterial [203]. Im Folgenden wird auf die Brillouinzone für das in dieser Arbeit verwendete Gitter bestehend aus Luftzylindern ($\varepsilon \approx 1$) in einer Diamantschicht ($\varepsilon = 5,76$ bei NV-Wellenlängen) näher eingegangen. Die Luftzylinder wiederholen sich dabei periodisch derart, dass eine hexagonale Anordnung mit einer Gitterkonstanten a entsteht (Abbildung 4.1a). Das Gitter wird durch die beiden Gittervektoren $\vec{a}_1 = \frac{a}{2}(\hat{x} + \hat{y}\sqrt{3})$ und $\vec{a}_2 = \frac{a}{2}(\hat{x} - \hat{y}\sqrt{3})$ aufgespannt. Die dazugehörigen reziproken Gittervektoren ergeben sich zu $\vec{b}_1 = \frac{2\pi}{a}(\hat{x} + \hat{y}/\sqrt{3})$ und $\vec{b}_2 = \frac{2\pi}{a}(\hat{x} - \hat{y}/\sqrt{3})$. Diese Basisvektoren spannen folglich ebenfalls ein hexagonales Gitter auf, allerdings ist die Längeneinheit umgekehrt proportional zu a und das reziproke Gitter gegenüber dem Gitter im realen Raum um 90° gedreht (Abbildung 4.1b).

Da die Wellenvektoren \vec{k} nur bis auf einen reziproken Gittervektor \vec{G} eindeutig bestimmt sind, kann für die Konstruktion der Brillouinzone ein beliebiger Gitterpunkt des reziproken Gitters gewählt werden. Von diesem Punkt ausgehend werden zu allen benachbarten Gitterpunkten Strecken eingezeichnet und die Mittelsenkrechten konstruiert. Die Brillouinzone wird nun von den Mittelsenkrechten begrenzt. Die Brillouinzone eines hexagonalen Gitters ist wiederum hexagonal und gegenüber dem reziproken Gitter um 90° gedreht. Allgemein gilt, dass Brillouinzone und auch reziprokes Gitter stets die gleiche Punktsymmetrie aufweisen wie der jeweilige Gittertyp [206]. Wann immer eine photonische Kristallstruktur eine Drehsymmetrie, eine Spiegelsymmetrie oder auch wie hier betrachtet eine Translationssymmetrie aufweist, so weisen auch die Frequenzen $\omega(\vec{k})$ der Moden diese Symmetrie auf.

Rotationssymmetrie

Neben der diskutierten Translationsymmetrie kann eine photonische Kristallstruktur auch eine Rotationssymmetrie aufweisen. Das in dieser Arbeit verwendete hexagonale Gitter etwa weist eine sechsstufige Drehsymmetrie um ganzzahlige Vielfache von 60° auf. Dies schränkt, wie im Folgenden dargelegt wird, die zu betrachteten \vec{k} -Werte auf einen kleinen Ausschnitt der Brillouinzone ein.

Allgemein wird die Drehung eines Vektorfelds $\vec{F}(\vec{r})$ durch einen Operator $O_{\mathcal{R}}$ beschrieben. Dieser Operator rotiert sowohl das Vektorfeld zu $\vec{F}' = \mathcal{R}\vec{F}$ als auch das Argument des Vektorfelds zu $\vec{r}' = \mathcal{R}^{-1}\vec{r}$. Der Operator $\mathcal{R}(\hat{n}, \alpha)$ beschreibt dabei die Drehung mit Winkel α um eine Achse \hat{n} . Es gilt folglich:

$$O_{\mathcal{R}}\vec{F}(\vec{r}) = \mathcal{R}\vec{F}(\mathcal{R}^{-1}\vec{r}) . \quad (4.35)$$

Ist die photonische Kristallstruktur invariant gegenüber der Drehung durch einen Operator $O_{\mathcal{R}}$, so kommutieren der Rotationsoperator und der Operator Θ , $[\Theta, O_{\mathcal{R}}] = 0$. Die Moden $\vec{H}_{\vec{k}}$ müssen folglich gleichzeitig Eigenfunktionen beider Operatoren sein. Für diese Moden gilt somit:

$$O_{\mathcal{R}}(\Theta\vec{H}_{\vec{k}}) = \Theta(O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) = \left(\frac{\omega(\vec{k})}{c}\right)^2 (O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) . \quad (4.36)$$

Ist die Mode $\vec{H}_{\vec{k}}$ Eigenzustand von Θ , so ist bei vorliegender Drehsymmetrie auch $O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}$ automatisch Eigenzustand von Θ mit gleichem Eigenwert und gleicher Frequenz $\omega(\mathcal{R}\vec{k}) = \omega(\vec{k})$.

Aufgrund der Invarianzen müssen auch $T_{\vec{R}}$ und $O_{\mathcal{R}}$ kommutieren, sodass gilt:

$$\begin{aligned} T_{\vec{R}}(O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) &= O_{\mathcal{R}}(T_{\mathcal{R}^{-1}\vec{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) \\ &= O_{\mathcal{R}}(e^{-i(\vec{k}\mathcal{R}^{-1}\vec{R})}\vec{H}_{\vec{k}}) \\ &= e^{-i(\vec{k}\mathcal{R}^{-1}\vec{R})}(O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) \\ &= e^{-i\mathcal{R}\vec{k}\vec{R}}(O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}) . \end{aligned} \quad (4.37)$$

$O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}$ ist somit Eigenfunktion des im Abschnitt zuvor eingeführten Translationsoperators $T_{\vec{R}}$ mit Eigenwert $e^{-i\mathcal{R}\vec{k}\vec{R}}$. Die Eigenfunktion $O_{\mathcal{R}}\vec{H}_{\vec{k}}$ kann folglich wie gewohnt als Bloch-Zustand mit Wellenvektor $\mathcal{R}\vec{k}$ interpretiert werden.

Aufgrund der sechsfachen Drehsymmetrie kann bei einem hexagonalen Gitter die Berechnung der Moden und zugehörigen Frequenzen folglich auf einen kleineren Teil der Brillouinzone, genauer gesagt ein Sechstel der Brillouinzone, beschränkt werden. Es genügt sogar, die Kalkulationen nur für ein Zwölftel der Brillouinzone durchzuführen. Dazu müssen jedoch neben der Rotationssymmetrie noch die im nächsten Abschnitt behandelten Spiegelsymmetrien berücksichtigt werden. Die Brillouinzone eines hexagonalen Gitters kann jedoch niemals durch einem kleineren Teil reproduziert werden, daher wird dieser Ausschnitt auch als erste Brillouinzone oder irreduzible Brillouinzone bezeichnet.

Spiegelsymmetrie

Ist eine Funktion $\vec{f}(\vec{r})$ spiegelsymmetrisch zur xy -Ebene, so gilt mit dem zugehörigen Spiegeloperator O_{M_z} :

$$O_{M_z}\vec{f}(\vec{r}) = M_z\vec{f}(M_z\vec{r}) \quad (4.38)$$

mit $M_z\hat{z} = -\hat{z}$, $M_z\hat{x} = \hat{x}$ und $M_z\hat{y} = \hat{y}$. Der Operator verändert somit \hat{z} zu $-\hat{z}$ und lässt \hat{x} und \hat{y} unverändert. Die möglichen Eigenwerte von O_{M_z} sind ± 1 . Ist die Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\vec{r})$ invariant bezüglich Spiegelung an der xy -Ebene, so kommutieren der Spiegeloperator O_{M_z} und Θ , $[\Theta, O_{M_z}] = 0$. Daher ist $O_{M_z}\vec{H}_{\vec{k}}$ erneut ein Bloch-Zustand mit Wellenvektor $M_z\vec{k}$.

Für zweidimensionale photonische Kristalle gilt aufgrund der vorliegenden Spiegelsymmetrie für jeden Wellenvektor \vec{k}_{\parallel} in der xy -Ebene stets $M_z\vec{k}_{\parallel} = \vec{k}_{\parallel}$. Daher gilt die folgende Eigenwertgleichung für ausnahmslos alle zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen:

$$O_{M_z}\vec{H}_{\vec{k}_{\parallel}}(\vec{r}) = M_z\vec{H}_{\vec{k}_{\parallel}}(M_z\vec{r}) = \pm\vec{H}_{\vec{k}_{\parallel}}(\vec{r}) . \quad (4.39)$$

Folglich wird das magnetische Feld entweder als gerade mit Eigenwert $+1$ oder als ungerade mit Eigenwert -1 bezüglich Spiegelung an der xy -Ebene bezeichnet. Gleiches gilt für das elektrische Feld. Da sich \vec{E} unter der Spiegelung wie ein Vektor, \vec{H} jedoch wie ein Pseudovektor verhält gilt:

gerade		ungerade		
$O_{M_z}E_z(\vec{r})$	=	$-E_z(M_z\vec{r})$		$O_{M_z}E_z(\vec{r}) = E_z(M_z\vec{r})$
$O_{M_z}H_z(\vec{r})$	=	$H_z(M_z\vec{r})$		$O_{M_z}H_z(\vec{r}) = -H_z(M_z\vec{r})$

(4.40)

Die Felder sind nach Gleichung (4.12) jedoch nicht unabhängig voneinander, sodass gilt:

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r}) = i\omega\mu_0\vec{H}(\vec{r}) \implies \frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = i\omega\mu_0 H_z \quad (4.41)$$

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r}) = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon(\vec{r})\vec{E}(\vec{r}) \implies \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = -i\omega\varepsilon_0\varepsilon(\vec{r})E_z . \quad (4.42)$$

Somit transformieren E_x und E_y unter Spiegelung an der xy -Ebene wie H_z sowie H_x und H_y wie E_z . Da in einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur bei Spiegelung an der xy -Ebene $O_{M_z}\vec{r} = \vec{r}$ gelten muss, folgt aus den Gleichungen (4.40), dass die einzigen für gerade M_z -Moden nicht verschwindenden Komponenten H_z , E_x und E_y sind. Für ungerade M_z -Moden verschwinden hingegen die Komponenten E_z , H_x und H_y nicht. Aufgrund dieser Polarisation werden die ersten Komponenten H_z , E_x , E_y als Transversal-Elektrische Moden (TE-Moden), die letzteren drei Komponenten H_x , H_y , E_z als Transversal-Magnetische Moden (TM-Moden) bezeichnet. Bei TE-Moden steht die magnetische Feldstärke senkrecht zur xy -Ebene, d. h. $\vec{H} = H(\vec{r}) \cdot \hat{z}$, und die elektrische Feldstärke liegt in der xy -Ebene, d. h. $E(\vec{r}) \cdot \hat{z} = 0$. Bei den TM-Moden verhält es sich genau umgekehrt.

Während die Spiegelsymmetrie zur xy -Ebene bei ausnahmslos allen zweidimensionalen photoni-

schen Kristallstrukturen vorliegt, weist speziell das in dieser Arbeit verwendete hexagonale Gitter zusätzliche Spiegelsymmetrien auf. Diese spezifischen Symmetrien sind teilweise identisch mit bereits behandelten Drehsymmetrien um Vielfache von 60° . Eine der Spiegelsymmetrien lässt sich jedoch nicht durch eine Drehung um diesen Winkel erzeugen. Diese sorgt wie bereits angesprochen dafür, dass es zusammen mit Translationssymmetrie und Rotationssymmetrie ausreicht, die Moden lediglich für \vec{k} -Werte innerhalb eines Zwölftels der Brillouinzone zu berechnen. Diese irreduzible Brillouinzone wird durch die charakteristischen Punkte Γ , M sowie K des reziproken Gitters festgelegt (Abbildung 4.1c).

4.2 Photonische Bandstrukturen

Die graphische Auftragung der Bandstruktur ist ein nützliches Instrument, um bei einem gegebenen photonischen Kristall die zu den Moden gehörenden Frequenzen in Abhängigkeit des Wellenvektors in der Brillouinzone darzustellen. Durch eine derartige Auftragung können insbesondere Frequenzwerte, mit denen sich Licht innerhalb der periodischen Struktur nicht ausbreiten darf, leicht ausfindig gemacht werden. Diese sogenannte photonische Bandlücke stellt die Grundlage für die Realisierung von Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen dar. Nach theoretischer Erarbeitung des Konzepts der Bandstruktur wird die Methodik zur Simulation derartiger photonischer Bandstrukturen vorgestellt. Im Anschluss daran werden Bandstrukturen für zweidimensionale photonische Kristallstrukturen näher betrachtet sowie eine Erweiterung auf periodische Strukturen in Diamantschichten endlicher Höhe erarbeitet.

4.2.1 Theorie und Simulationsmethodik

Die Moden des Operators Θ können, wie in den vorherigen Abschnitten dargelegt wurde, für eine photonische Kristallstruktur aufgrund der vorliegenden Translationssymmetrie als Bloch-Zustände geschrieben werden, siehe etwa Gleichung (4.34):

$$\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r}) = \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}} .$$

Alle Informationen über die Moden $\vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r})$ sind im Wellenvektor \vec{k} sowie in den periodischen Modulationsfunktionen $\vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r})$ enthalten. Um die Funktionen $\vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r})$ zu berechnen, kann folgende Eigenwertgleichung aus der Wellengleichung (4.18) hergeleitet werden²:

$$\begin{aligned} \Theta \vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r}) &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{H}_{\vec{k}}(\vec{r}) \\ \vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}}\right) &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}} \end{aligned}$$

²Es gilt die Identität: $\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \vec{\nabla} \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \cdot e^{i\vec{k}\vec{r}}\right) = \vec{\nabla} \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \left(e^{i\vec{k}\vec{r}} \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r})\right) + \vec{\nabla} \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} \left(\nabla e^{i\vec{k}\vec{r}} \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r})\right) = \vec{\nabla} \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (i\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\vec{r}} = (i\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (i\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\vec{r}}$.

$$\begin{aligned}
(\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \\
\Theta_{\vec{k}} \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) &= \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) .
\end{aligned} \tag{4.43}$$

Somit ergibt sich ein neuer hermitescher Operator $\Theta_{\vec{k}}$, der wie folgt festgelegt ist:

$$\Theta_{\vec{k}} \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) \hat{=} (\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} (\vec{k} + \vec{\nabla}) \times \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) . \tag{4.44}$$

Die Moden müssen zusätzlich zur neuen Eigenwertgleichung (4.43) weiterhin die Transversalitätsbedingung erfüllen. Diese ergibt sich durch Einsetzen von Gleichung (4.34) zu:

$$(\vec{k} + \vec{\nabla}) \cdot \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) = 0 . \tag{4.45}$$

Ferner muss weiterhin die Periodizitätsbedingung $\vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r}) = \vec{u}_{\vec{k}}(\vec{r} + \vec{R})$, die auf der vorliegenden Translationssymmetrie beruht, für alle Gittervektoren \vec{R} erfüllt sein. Daher genügt es, wie in den vorherigen Abschnitten bereits dargelegt wurde, die Lösung des Eigenwertproblems auf die Brillouinzone zu beschränken.

Wird ein Eigenwert eines hermiteschen Operators auf ein endliches Volumen eingeschränkt, hier die Brillouinzone, so erhält man automatisch ein Spektrum aus zwar unendlich vielen aber diskreten Eigenwerten [203]. Für jeden Wellenvektor \vec{k} können unendlich viele Gruppen von Moden $\vec{H}_{\vec{k},m}$ gefunden werden, deren zugehörige Frequenzen $\omega_m(\vec{k})$ durch diskrete Frequenzabstände voneinander getrennt sind. Jeder solchen Gruppe von Moden kann daher ein sogenannter Bandindex m zugeordnet werden. Da die \vec{k} -Werte innerhalb der Brillouinzone kontinuierlich variieren, verändern sich auch die Frequenzen kontinuierlich. Daher können die Frequenzen der Moden in einem photonischen Kristall als kontinuierliche Funktionen $\omega_m(\vec{k})$ interpretiert werden. Der Bandindex m steigt dabei mit zunehmender Frequenz der Moden an. Die Menge aller $\{\omega_m(\vec{k})\}$ wird als photonische Bandstruktur bezeichnet.

Liegen neben der Translationssymmetrie weitere Symmetrien vor, so kann die Betrachtung der Bandstruktur auf \vec{k} -Werte in einem kleineren Bereich der Brillouinzone beschränkt werden. Für das hexagonale Gitter etwa genügt es die Bandstruktur für \vec{k} -Werte innerhalb der irreduziblen Brillouinzone zu berechnen. Diese irreduzible Brillouinzone bedeckt für das hexagonale Gitter lediglich ein Zwölftel der Brillouinzone.

Berechnung von Bandstrukturen mit MPB

Zur Berechnung von Bandstrukturen gibt es mehrere leistungsstarke Programme, wie etwa das in dieser Arbeit eingesetzte Programm MBP. Dieses Programm wurde durch Johnson und Joannopoulos [207] am Massachusetts-Institut für Technologie (MIT) entwickelt und verwendet eine blockiterative frequenzbezogene Methode für Maxwellgleichungen in einer Basis aus ebenen Wellen (*plane wave expansion method*, PWEM).

Das Eigenwertproblem in Gleichung (4.43) wird in MPB zu einem endlichen Eigenwertproblem umgewandelt, indem die Eigenfunktionen $\vec{u}_{\vec{k}}$ nach einer endlichen Basis $\{\vec{b}_m\}$ wie folgt entwickelt

werden:

$$\vec{u}_{\vec{k}} \cong \sum_{m=1}^N h_m \vec{b}_m \quad (4.46)$$

mit $\lim_{N \rightarrow \infty} \sum_{m=1}^N h_m \vec{b}_m = \vec{u}_{\vec{k}}$. Die endliche Basis $\{\vec{b}_m\}$ wird dabei durch $\vec{b}_m = e^{i\vec{G}_m \vec{r}}$ festgelegt, mit geeigneten reziproken Gittervektoren \vec{G}_m und $m \leq N$. Der Übergang zwischen einer Basis aus ebenen Wellen und einer räumlichen Basis entspricht einer diskreten Fouriertransformation. Sind drei primitive Gittervektoren $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ gegeben, so lassen sich die reziproken Gittervektoren durch $\vec{a}_i \cdot \vec{G}_j = 2\pi\delta_{ij}$ berechnen (Abschnitt 4.1.2). Das Eigenwertproblem kann somit als

$$\underline{\Theta} \vec{h} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \underline{B} \vec{h} \quad (4.47)$$

mit $N \times N$ Matrizen $\underline{\Theta}$ und \underline{B} und dem Spaltenvektor \vec{h} mit den Koeffizienten h_m als Einträgen geschrieben werden. Für die Einträge der Matrizen gilt $\Theta_{lm} = \langle \vec{b}_l | \Theta_{\vec{k}} | \vec{b}_m \rangle$ und $B_{lm} = \langle \vec{b}_l | \vec{b}_m \rangle$. Die Basisvektoren \vec{b}_m werden so gewählt, dass mit möglichst niedrigem N möglichst präzise Ergebnisse erzielt werden und darüber hinaus die Produkte $\underline{\Theta} \vec{h}$ sowie $\underline{B} \vec{h}$ leicht berechnet werden können. Werden die Einträge der beiden Matrizen auf direktem Wege berechnet, so wird Speicherplatz der Größenordnung $\mathcal{O}(N^2)$ benötigt bei einem Rechenaufwand der Größenordnung $\mathcal{O}(N^3)$.

Aufgrund der beiden Nabla-Operatoren in Gleichung (4.44) ist prinzipiell eine Differenzialgleichung zu lösen. Durch Übergang in den Fourierraum (mit Basis aus ebenen Wellen) wird jedoch aus der Ableitung $\vec{\nabla}$ lediglich eine Multiplikation mit \vec{G}_m . Somit kann Gleichung (4.47) mit einem geringeren Rechenaufwand der Größenordnung $\mathcal{O}(N \log N)$ gelöst werden. Im Fourierraum wird zunächst wie anhand von Gleichung (4.48) zu erkennen ist das Kreuzprodukt des Matrixeintrags Θ_{lm} angewendet und anschließend erneut fouriertransformiert. Zurück im Ortsraum kann nun mit $1/\varepsilon(\vec{r})$ multipliziert werden, anschließend nach inverser Fouriertransformation zurück im \vec{k} -Raum erneut das Kreuzprodukt auf das Zwischenergebnis angewendet werden:

$$\Theta_{lm} = -(\vec{k} + \vec{G}_m) \times \dots \text{IFFT} \dots 1/\varepsilon(\vec{r}) \dots \text{FFT} \dots (\vec{k} + \vec{G}_m) \times \dots \quad (4.48)$$

Ferner ist hierbei die Transversalitätsbedingung mit $\vec{h}_m \cdot (\vec{k} + \vec{G}_m) = 0$ automatisch erfüllt, da sich für jeden beliebigen reziproken Gittervektor \vec{G}_m zwei orthogonale Einheitsvektoren finden lassen, die senkrecht auf $(\vec{k} + \vec{G}_m)$ stehen.

In MPB besteht darüber hinaus die Möglichkeit, eine andere Basis zu wählen, etwa eine endliche Basis aus lokalisierten Funktionen auf einem unstrukturierten Gitter. Während bei Wahl einer solchen alternativen Basis die Transversalitätsbedingung in drei Dimensionen nicht so leicht zu erfüllen ist, stellt dies im zweidimensionalen Fall kein Problem dar, entweder wird das magnetische Feld in z -Richtung (TE) orientiert oder entsprechend das elektrische Feld (TM). Folglich kann eine Bandstruktur zumindest für eine zweidimensionale photonische Kristallstruktur mit geringerem Rechenaufwand der Größenordnung $\mathcal{O}(N)$ statt $\mathcal{O}(N \log N)$ berechnet werden.

Für das Auffinden von Bandlücken innerhalb einer photonischen Bandstruktur sind normalerweise lediglich die ersten p Bänder mit $p \ll N$ von Interesse. Zur Berechnung dieser Frequenz-

bänder werden in MPB solange Werte für die Eigenvektoren des $N \times N$ Eigenwertproblems in Gleichung (4.47) ausprobiert, bis die Berechnungen konvergieren (*iterative Eigensolver*). Dabei ist die Anzahl der Iterationsschritte bis zur Konvergenz nahezu unabhängig von der gewählten Auflösung und nimmt auch nur langsam mit der Anzahl der zu berechnenden Bänder zu. Es gibt eine Vielzahl solcher *iterative Eigensolver* Algorithmen, in MPB wird die Methode des Block-Rayleigh-Quotienten angewendet.

Die Methode des Rayleigh-Quotienten beruht zunächst auf der Berechnung des niedrigsten Eigenwertes und der zugehörigen Eigenfunktion durch Minimieren des sogenannten Rayleigh-Quotienten mithilfe des Rayleigh-Ritz-Algorithmus [208]. Der Rayleigh-Quotient ist gegeben als:

$$\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 = \min_h \frac{h^\dagger \underline{\underline{\Theta}} h}{h^\dagger \underline{\underline{B}} h}. \quad (4.49)$$

Für höhere Eigenwerte wird dieser Algorithmus wiederholt mit orthogonalen Eigenfunktionen ausgeführt. Die Methode des Block-Rayleigh-Quotienten spezialisiert berechnet alle Eigenwerte gleichzeitig, was erheblichen Rechenvorteil mit sich bringt, allerdings auch mehr Speicherplatz benötigt. Weitere Vorteile bringt es mit sich, wenn die dielektrische Funktion $\varepsilon(\vec{r})$ eine Inversionssymmetrie aufweist. In diesem Falle ist die Fouriertransformierte einer reellen und geraden Funktion selbst wieder gerade und reell und auch die Koeffizienten \vec{h}_m aus Gleichung (4.46) können reell gewählt werden. Dies spart einen Faktor zwei an Speicherplatz und mehr als zwei an Rechenaufwand ein. Symmetrische Strukturen bringen somit stets einen Rechenvorteil mit sich. Für das hexagonale Gitter kann unter Ausnutzung der weiteren Symmetrien der zur Berechnung der Bandstruktur benötigte Speicherplatz sowie der erforderliche Rechenaufwand weiter reduziert werden.

4.2.2 Bandstruktur des hexagonalen photonischen Kristallgitters

Zur Berechnung der Bandstruktur einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur mit hexagonalem Gitter ist es ausreichend, nur Wellenvektoren \vec{k}_\parallel entlang der Kanten der irreduziblen Brillouinzone zu betrachten. Dies liegt nach Lourtioz et al. [209] darin begründet, dass zum einen die Kanten der irreduziblen Brillouinzone aufgrund der Symmetrie der Struktur auch die Symmetrieachsen von $\omega(\vec{k})$ darstellen und des Weiteren $\omega(\vec{k})$ stetig differenzierbar ist. Die Extrema der Funktion $\omega(\vec{k})$ liegen folglich entlang der Kanten der irreduziblen Brillouinzone. Innerhalb dieses durch die Kanten begrenzten Bereichs liegt kein weiteres Extremum von Interesse.

In Abbildung 4.2a ist $\omega(\vec{k}_\parallel)$ zunächst für einen Block aus Diamant-Volumenmaterial dargestellt. Die Frequenz ist in Vielfachen von $2\pi c/a$ angegeben mit der Lichtgeschwindigkeit c im Vakuum. Für die Einheit des Wellenvektors gilt $[k] = 2\pi/a$, siehe etwa [210]. Zwischen M -Punkt und K -Punkt liegt \vec{k}_\parallel genau auf dem Rand der ersten Brillouinzone. Im Diamantblock verläuft die Funktion $\omega(\vec{k}_\parallel)$ für das erste Band entlang der sogenannten Lichtlinie, auf die im weiteren Verlauf noch näher eingegangen wird. Für Frequenzen entlang dieser Lichtlinie gilt:

$$\omega(\vec{k}) = \frac{ck}{\sqrt{\varepsilon}}. \quad (4.50)$$

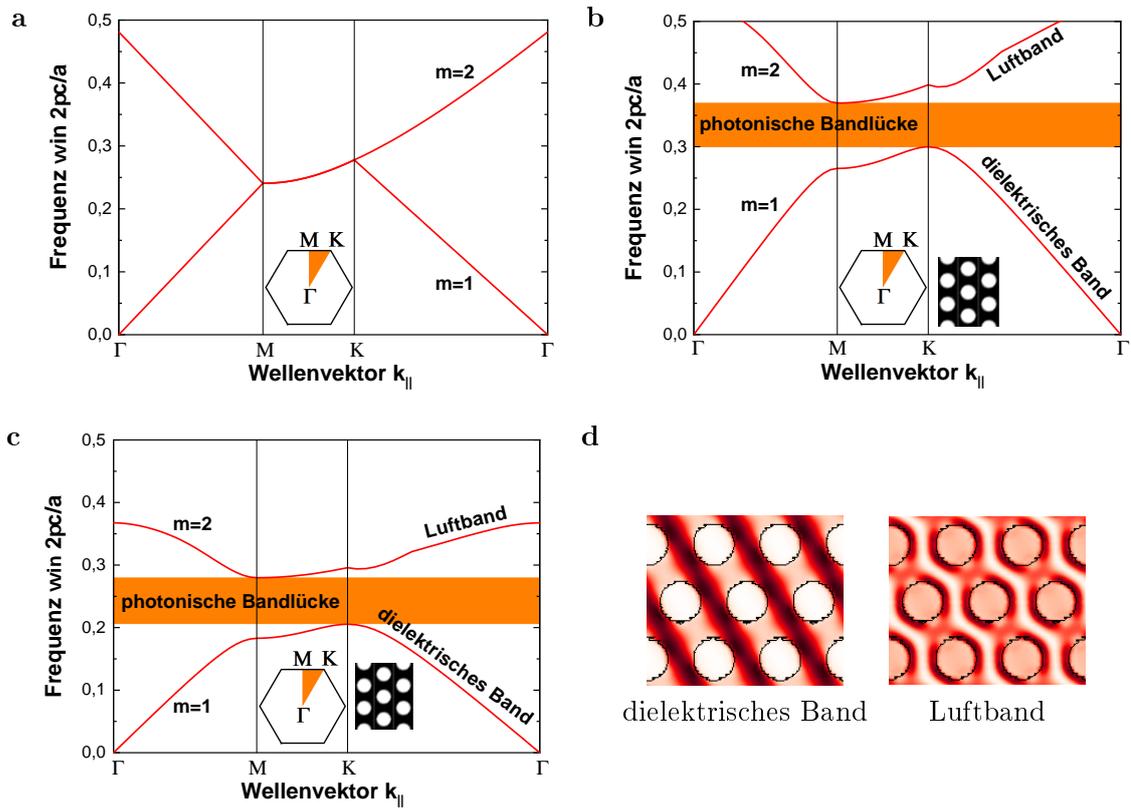


Abbildung 4.2: Photonische Bandstruktur (TE) für die Lichtausbreitung innerhalb der xy -Ebene in einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur. (a) Diamantblock ($\epsilon = 5,76$), (b) Diamantblock mit Luftzylindern mit $R = 0,31a$ angeordnet im hexagonalen Gitter, (c) Siliziumblock ($\epsilon = 12,5$) mit Luftzylindern mit $R = 0,31a$, ebenfalls angeordnet im hexagonalen Gitter. Die beiden kleinen Inlaygrafiken stellen die irreduzible Brillouinzone des hexagonalen Gitters und die simulierte Struktur dar. Die schwarzen Bereiche stehen dabei für Bereiche mit hoher Dielektrizitätskonstante. (d) Elektrische Energiedichte für dielektrisches Band und Luftband bei einem hexagonalen Gitter von Luftzylindern mit $R = 0,31a$ in Diamant. Die roten Bereiche stellen eine hohe Energiedichte dar.

In Abbildung 4.2b liegt eine periodische Struktur aus Luftzylindern in Diamant ($\epsilon = 5,76$) vor, angeordnet im hexagonalen Gitter. Bei geeigneter Wahl der Lochradien entsteht zwischen den ersten beiden TE-polarisierten Bändern ein Frequenzbereich, in dem keine Moden existieren. Dieser Bereich wird als photonische Bandlücke bezeichnet. TE-polarisiertes Licht mit Frequenzen innerhalb der Bandlücke kann sich in der photonischen Kristallstruktur nicht ausbreiten. In den betrachteten Bandstrukturen wird das Band oberhalb der photonischen Bandlücke als Luftband (*air band*), das Band unterhalb der Bandlücke als dielektrisches Band (*dielectric band*) bezeichnet, analog zu Leitungsband und Valenzband in der Festkörperphysik. Die Bezeichnung dielektrisches Band beruht auf der Tatsache, dass wie in Abbildung 4.2d illustriert die elektrische Energiedichte des untersten Bandes in Bereichen hoher Dielektrizitätskonstante konzentriert ist. Die Energie wird dadurch minimiert, verbunden mit einer geringen Frequenz der Mode. Da wie in Abschnitt 4.1.1 bereits dargelegt wurde nicht entartete Moden stets orthogonal zueinander

stehen, ist die elektrische Energiedichte des zweiten Bandes folglich in Regionen mit niedrigerem Brechungsindex lokalisiert, daher die Bezeichnung Luftband. Diese Situation ist energetisch ungünstiger und führt zu einer höheren Energie und somit höheren Frequenz der Mode des zweiten Bandes. Der energetische Abstand zwischen Luftband und dielektrischem Band ist verantwortlich für das Auftreten einer photonischen Bandlücke [209].

Aufgrund der diskutierten Skalierungsinvarianz der Maxwellgleichungen ist es schwierig, objektiv von der Größe einer Bandlücke zu sprechen. Deren Breite $\Delta\omega$ ist von dem Skalierungsparameter s abhängig (wird die Struktur um s gestreckt, so verringert sich die Breite der Bandlücke auf $\Delta\omega/s$). Gesucht ist folglich ein von der Gitterkonstante und somit von der Größe des Kristalls unabhängiges Maß für die Bandlückengröße. Dazu wird das Verhältnis zwischen Breite $\Delta\omega$ der Bandlücke und Frequenz ω_0 der Bandlückenmitte als relative Bandlückengröße \mathcal{B}_{rel} angesetzt:

$$\mathcal{B}_{\text{rel}} = \frac{\Delta\omega}{\omega_0} . \quad (4.51)$$

Dieses Verhältnis bleibt von Skalierungsvorgängen unberührt.

Position und relative Größe der Bandlücke hängen von mehreren Faktoren ab, die wichtigsten Einflussfaktoren werden im Folgenden kurz dargelegt:

Kontrast in den Dielektrizitätskonstanten: Wie anhand von Abbildung 4.2 zu erkennen hängt die relative Größe der Bandlücke vom vorliegenden Unterschied in den Dielektrizitätskonstanten der beiden sich periodisch wiederholenden Materialien ab. Je größer dieser Unterschied ist, desto größer ist auch die photonische Bandlücke. Ferner wird auch die Lage der Bandlücke durch den Kontrast in den Dielektrizitätskonstanten entscheidend beeinflusst. Nach Gleichung (4.50) liegt die Bandlücke für Luftzylinder in Silizium ($\varepsilon = 12,5$) bei niedrigeren Frequenzen als für die analoge periodische Struktur von Luftzylindern in Diamant ($\varepsilon = 5,76$). Diese Vorhersage wird durch die Simulationsergebnisse in Abbildung 4.2 bestätigt.

Radien der Luftzylinder: Der Einfluss der Radien der Luftzylinder auf Lage und Breite der Bandlücke ist in der Bandlückenkarte in Abbildung 4.3a dargestellt. Betrachtet man die Karte für das hexagonale Gitter aus Luftzylindern in Diamant, so erkennt man, dass eine TE-Bandlücke zwischen dem ersten und zweiten TE-Band für Radien der Luftzylinder von $R = 0,19a$ bis $R = 0,49a$ existiert. Je größer die Radien gewählt sind, desto größer ist auch die Frequenz der Bandlückenmitte. Dieser Sachverhalt lässt sich auch unmittelbar aus Gleichung (4.50) ableiten. Werden die Radien der Luftzylinder vergrößert, so nimmt die mittlere Dielektrizitätskonstante ε ab, die Frequenz ω steigt folglich an. Die größtmögliche Bandlückenbreite $\Delta\omega$ ergibt sich für $R = 0,4a$ mit einer Bandlückengröße von 29,7%.

Polarisation: Photonische Kristallstrukturen weisen individuelle Bandschemata auf, die darüber hinaus für TE-Moden und TM-Moden stark verschieden sein können, wie etwa anhand von Abbildung 4.3b für ein hexagonales Gitter zu erkennen ist. Im Allgemeinen lässt sich festhalten: Sind in einer Struktur Bereiche mit höherer Dielektrizitätskonstanten ε verbunden und liegen

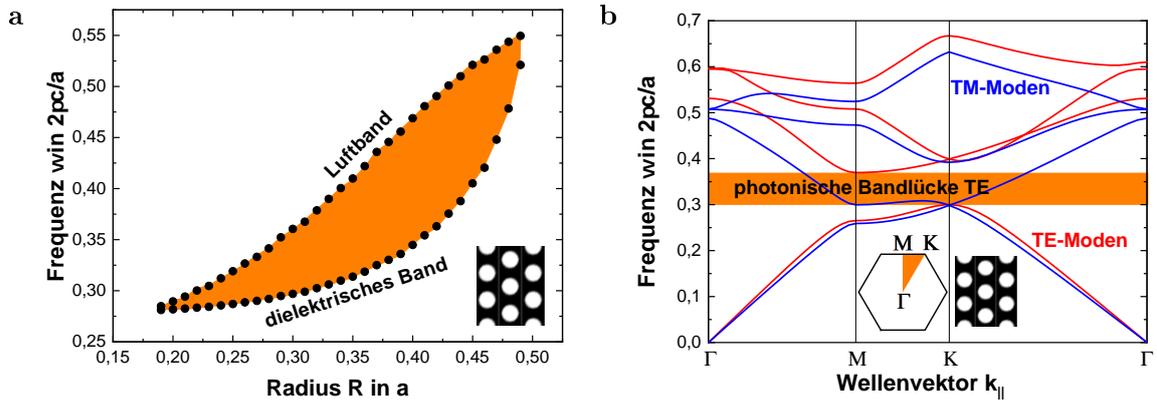


Abbildung 4.3: (a) Bandlücke eines hexagonalen Gitters von Luftzylindern in Diamant ($\varepsilon = 5,76$) in Abhängigkeit des Radius R der Luftzylinder. (b) Bandstruktur für das hexagonale Gitter mit $R = 0,31 a$. Zu beachten ist die photonische Bandlücke für TE-Moden zwischen dem ersten und zweiten TE-Band. Für TM-Moden liegt hingegen keine Bandlücke vor. Die Inlaygrafiken stellen die irreduzible Brillouinzone des hexagonalen Gitters sowie die simulierte Struktur dar. Die schwarzen Bereiche stehen dabei für Bereiche hoher Dielektrizitätskonstante.

Bereiche mit niedrigerem ε entsprechend isoliert, so liegt primär eine Bandlücke für TE-Moden vor, im umgekehrten Fall für TM-Moden [203]. Daher können durch Variation der Durchmesser der Luftzylinder Bandlücken sowohl für TE-Moden als auch für TM-Moden erzielt werden.

4.2.3 Photonischer Kristall mit endlicher Höhe

Bislang haben sich die theoretischen Betrachtungen von zweidimensionalen photonischen Kristallen stets auf die xy -Ebene beschränkt. Die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Strukturen weisen jedoch zusätzlich eine endliche Ausdehnung in z -Richtung auf. Im Folgenden werden die Auswirkungen dieser zusätzlichen Ausdehnung auf Moden und Bandstruktur dargelegt.

Dazu wird zunächst eine photonische Kristallstruktur mit kontinuierlicher Translationssymmetrie in z -Richtung betrachtet. Die Moden können unter Berücksichtigung dieser Symmetrie wie gewohnt als Bloch-Zustände dargestellt werden [203]:

$$\vec{H}_{m,k_z,\vec{k}_{\parallel}}(\vec{r}) = \vec{u}_{m,k_z,\vec{k}_{\parallel}}(\vec{\rho}) \cdot e^{i\vec{k}_{\parallel}\vec{\rho}} \cdot e^{ik_z z} \quad (4.52)$$

mit $\vec{u}(\vec{\rho}) = \vec{u}(\vec{\rho} + \vec{R})$ für alle Gittervektoren \vec{R} . Der Vektor $\vec{\rho}$ stellt die Projektion des Ortsvektors \vec{r} in die xy -Ebene dar. Aufgrund der Symmetrien des photonischen Kristalls können die Moden nach k_z , der Projektion \vec{k}_{\parallel} des Wellenvektors in die $k_x k_y$ -Ebene sowie dem Bandindex m klassifiziert werden. Jede Mode mit $k_z = 0$ ist invariant unter Spiegelung an der xy -Ebene. Die hier vorliegende Spiegelsymmetrie an der xy -Ebene erlaubt somit die Moden auch bei zusätzlicher unendlicher Ausdehnung in z -Richtung wie gewohnt in TE-Moden und TM-Moden zu klassifizieren. Bei TE-Moden steht das magnetische Feld senkrecht zur xy -Ebene und das elektrische Feld liegt in dieser Ebene. Für TM-Moden verhalten sich die Felder genau umgekehrt.

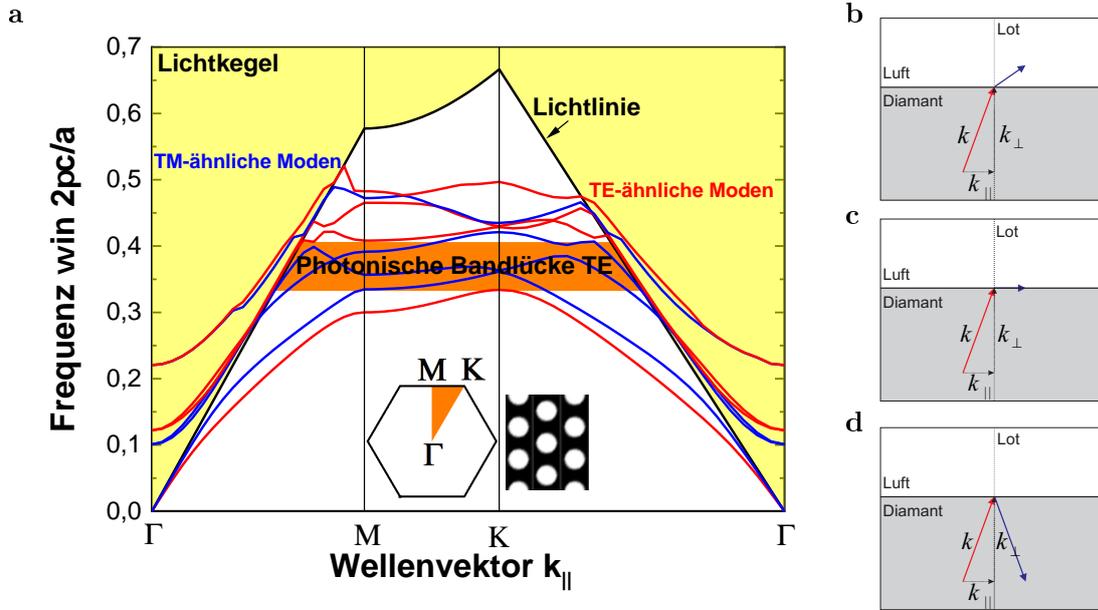


Abbildung 4.4: Diamantschicht endlicher Höhe. (a) In die $k_x k_y$ -Ebene projizierte Bandstruktur einer Diamantschicht ($h = 1,1 a$; $\varepsilon = 5,76$), strukturiert mit einem hexagonalen Gitter von Luftzylindern mit Radius $R = 0,31 a$. Die blauen Linien stellen TM-ähnliche Moden dar, die roten Linien TE-ähnliche Moden. Innerhalb des Lichtkegels (gelb) existieren keine geführten Moden. Die beiden kleinen Inlaygrafiken stellen die irreduzible Brillouinzone des hexagonalen Gitters und die simulierte Struktur dar. Die schwarzen Bereiche stehen dabei für eine hohe Dielektrizitätskonstante. (b-d) Idealisierte Lichtführung an der Grenzfläche Diamant/Luft im Strahlenmodell für den Fall (b) $\omega > c \cdot k_{\parallel}$, (c) $\omega = c \cdot k_{\parallel}$, (d) $\omega < c \cdot k_{\parallel}$.

Nachfolgend wird nun eine Kristallschicht mit endlicher Ausdehnung in z -Richtung und somit endlicher Höhe h betrachtet. Die Lichtausbreitung in der xy -Ebene wird wie gewohnt durch die photonische Kristallstruktur bestimmt. Breitet sich jedoch auch eine Komponente des Lichts in z -Richtung aus, so gelangt das Licht an die Grenzfläche zwischen Diamant und Luft. Ein Teil des Lichts wird an der Grenzfläche reflektiert und ein Teil des Lichts transmittiert. Da Diamant optisch dichter ist als Luft, kann hierbei das Phänomen der Totalreflexion auftreten.

In Abbildung 4.4a ist die in die $k_x k_y$ -Ebene projizierte Bandstruktur eines photonischen Kristalls für eine Kristallschicht endlicher Höhe dargestellt. Die zentralen Elemente der Lichtausbreitung werden im Folgenden anhand dieser Bandstruktur näher erläutert.

Lichtkegel ($\omega > c \cdot k_{\parallel}$): Dieser Fall ist in Abbildung 4.4b dargestellt. Das Licht trifft auf die Grenzfläche Diamant/Luft unter einem Winkel kleiner als der Grenzwinkel α_{Grenz} und kann den Diamanten folglich verlassen. Der Wellenvektor \vec{k} des auf die Grenzfläche zwischen Diamant und Luft auftreffenden Lichts wird in einen Anteil parallel zur Grenzfläche \vec{k}_{\parallel} und einen Anteil \vec{k}_{\perp} senkrecht zur Grenzfläche aufgespalten. Es gilt:

$$\omega = c|\vec{k}| = c\sqrt{k_{\parallel}^2 + k_{\perp}^2}. \quad (4.53)$$

Folglich gehört zu jedem gegebenen Wellenvektor \vec{k}_{\parallel} ein ganzes Kontinuum von ebenen Wellen mit Frequenz ω und einer nicht verschwindenden vertikalen Komponente \vec{k}_{\perp} in Luft. Diese möglichen Zustände sind Moden, die aus der photonischen Kristallschicht gemäß dem Snelliusschen Brechungsgesetzes abgestrahlt und somit in der photonischen Kristallstruktur nicht geführt werden. Weit entfernt von der Diamantschicht sind die Moden wieder als ebene Wellen darstellbar. In der Bandstruktur bildet das Kontinuum der abgestrahlten Moden den sogenannten Lichtkegel.

Lichtlinie ($\omega = c \cdot k_{\parallel}$): Dieser Fall ist in Abbildung 4.4c dargestellt. Das Licht innerhalb der Diamantschicht trifft unter dem Grenzwinkel der Totalreflexion auf die Grenzfläche Diamant/Luft. Der vertikale Anteil \vec{k}_{\perp} des ausfallenden Wellenvektors in Luft verschwindet dementsprechend, das Licht wird parallel zur Kristalloberfläche geführt.

Geführte Moden ($\omega < c \cdot k_{\parallel}$): Der Einfallswinkel ist wie in Abbildung 4.4d angedeutet nun größer als der Grenzwinkel α_{Grenz} für die Totalreflexion an der Grenzfläche Diamant/Luft. Das Licht an der Grenzfläche wird total reflektiert und somit innerhalb der photonischen Kristallschicht geführt, die Moden werden dementsprechend als geführte Moden bezeichnet. Das Snelliussche Brechungsgesetz liefert mathematisch für diese Eigenfunktionen in der umgebenden Luft lediglich imaginäre Lösungen mit $k_{\perp} = \pm i \sqrt{k_{\parallel}^2 - \omega^2/c^2}$. Es handelt sich hierbei um evaneszente Modenfelder, deren Amplitude in der umgebenden Luft exponentiell abfällt.

Die geführten Moden können auch bei einer Kristallschicht endlicher Höhe bezüglich ihres Symmetrieverhaltens bei Spiegelung an der xy -Ebene klassifiziert werden. Dazu werden die Moden zunächst in die xy -Ebene projiziert und diese Projektion wie gewohnt nach dem vorliegenden Symmetrieverhalten bei Spiegelung an der xy -Ebene klassifiziert. Es liegt zwar folglich keine reine TE-Polarisation bzw. TM-Polarisation vor, jedoch können die geführten Moden analog in TE-ähnliche und TM-ähnliche Moden unterteilt werden. Bei Betrachtung der Bandstruktur in Abbildung 4.4a lässt sich erkennen, dass die zu den geführten Moden gehörenden Frequenzen unterhalb der Lichtlinie ferner diskrete TE-ähnliche und TM-ähnliche Bänder mit einer ausgeprägten Bandlücke für TE-ähnliche Moden unterhalb der Lichtlinie ausbilden.

4.3 Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallen

Im vorangegangenen Abschnitt wurden bereits die Grundlagen zur Beschreibung der Lichtausbreitung in photonischen Kristallstrukturen dargelegt. Von entscheidender Bedeutung für zahlreiche Anwendungen in der Quantenoptik ist dabei die Existenz einer photonischen Bandlücke. Licht mit Frequenzen innerhalb der Bandlücke kann sich in einer photonischen Kristallstruktur nicht ausbreiten. Dies stellt auch die Grundlage zur Realisierung von Resonatoren in photonischen Kristallen dar [211]. Durch gezielt eingefügte Defekte in der ansonsten perfekten periodischen Struktur können lokalisierte Moden erzeugt werden, die das Licht auf kleinstem Raum einschließen. Die den Defekt umgebende ungestörte periodische Struktur wirkt dabei als frequenzabhängiger und polarisationssensitiver Bragg-Spiegel. Insbesondere ermöglichen Punktdefekte, die durch

das lineare Verschieben oder das Entfernen benachbarter, auf einer Linie liegender Luftzylinder hervorgerufen werden die Realisierung eines Resonators in einer photonischen Kristallstruktur, der Moden mit hohen Gütefaktoren und kleinen Modenvolumina aufweist.

Im Folgenden werden nach Erarbeitung der theoretischen Grundlagen die durchgeführten Simulationen der Lichtführung in durch Punktdefekte erzeugten Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in Diamant dargelegt. Die Moden werden aufgrund ihres Symmetrieverhaltens klassifiziert und ihre Kenngrößen wie Frequenz, Gütefaktor oder auch Modenvolumen bestimmt. Abschließend wird die simulationsgestützte Optimierung ausgewählter Resonatoren mithilfe des Prinzips des *gentle confinement* dargelegt.

4.3.1 Punktdefekte in photonischen Kristallen

In zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen ist es möglich, die Lichtausbreitung durch Punktdefekte in der ansonsten periodischen Struktur partiell zu kontrollieren. Derartige lokale Defekte erzeugen einen Symmetriebruch, der lokalisierte Zustände innerhalb der photonischen Bandlücke ermöglicht. Licht, das mit einer Frequenz innerhalb der Bandlücke in die Defektregion eingestrahlt wird, kann in drei Dimensionen geführt werden. Innerhalb der xy -Ebene erfolgt die Lokalisierung durch Braggreflexion der umgebenden periodischen Struktur. Verluste treten vorwiegend auf, wenn das Licht in z -Richtung auf die Grenzschicht Diamant/Luft trifft. In dieser Richtung wird ein Teil des Lichts durch Totalreflexion innerhalb der Kristallschicht geführt (siehe Abschnitt 4.2.3), ein Teil des Lichts kann jedoch auch den Kristall verlassen.

Donatormoden und Akzeptormoden

Die entstehenden Moden innerhalb der Bandlücke werden angelehnt an die Halbleitertechnik in Donatormoden und Akzeptormoden eingeteilt. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten photonischen Kristallstrukturen bestehen aus einem hexagonalen Gitter aus Luftzylindern in Diamant. Wird der Radius eines Luftzylinders vergrößert, so wird in direkter Umgebung der Defektstelle der Anteil an Luft erhöht (Abbildung 4.5c). Die mittlere Permittivität nimmt folglich lokal ab. Nach Gleichung (4.50) führt diese lokale Verringerung der Permittivität zu einer Erhöhung der Frequenz ω . Eine Bloch-Mode, die zuvor noch im dielektrischen Band unterhalb der photonischen Bandlücke gebunden war, schiebt sich durch diese Störung der Periodizität in die Bandlücke. Wie in Abbildung 4.5a zu erkennen ist, wird die Bandlücke von einer TE-Mode am K -Punkt der irreduziblen Brillouinzone zu niedrigen Frequenzen hin begrenzt. Eine lokale Erhöhung der Modenfrequenz führt demzufolge zu einer Mode, die sich vom K -Punkt ausgehend in die Bandlücke schiebt. Eine derartige Mode wird als Akzeptormode bezeichnet. Sie hat ihren Namen daher, da sie aufgrund ihrer Entstehungshistorie meist knapp oberhalb des dielektrischen Bandes liegt, analog zu einem Elektronenakzeptor in der Halbleitertechnik [212].

Analog dazu wird durch Verkleinern des Radius eines Luftzylinders der Anteil an Materie mit hoher Permittivität in der Nähe des Defekts vergrößert (Abbildung 4.5b). Die mittlere Permittivität nimmt folglich lokal zu, die Frequenz ω wird erniedrigt. Eine zuvor noch im Luftband gebundene

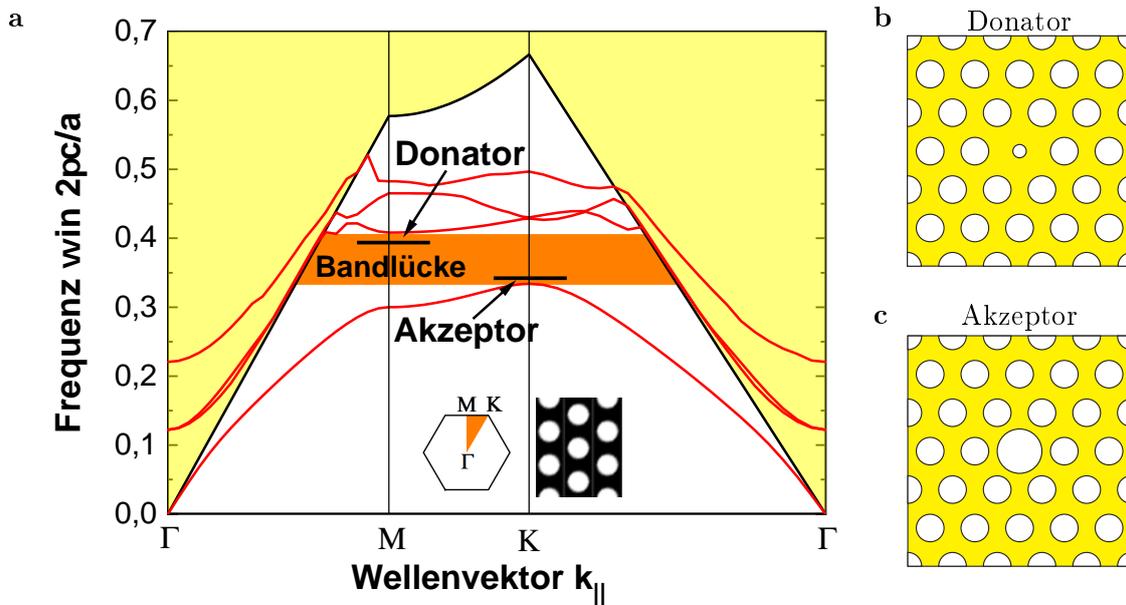


Abbildung 4.5: Lokalisierte Moden durch Punktdefekte. (a) TE-Bandstruktur für ein hexagonales Gitter aus Luftzylindern mit Radius $R = 0,31 a$ in einer Diamantschicht endlicher Höhe. Die Lage von Akzeptormoden und Donatormoden ist in der Bandstruktur angedeutet. (b) Eine Donatormode entsteht im einfachen Modell durch Verkleinern, (c) eine Akzeptormode durch Vergrößern eines Luftzylinders.

Mode schiebt sich ausgehend vom M -Punkt in die Bandlücke (Abbildung 4.5a). Derartige Moden werden als Donatormoden bezeichnet. Diese liegen meist knapp unterhalb des Luftbandes. Die Namensgebung ist wiederum angelehnt an den Elektronendonator in der Festkörperphysik [212]. Wird etwa der Radius der Luftzylinder noch weiter verkleinert, so kann die Mode theoretisch je nach Struktur sogar vollständig durch die Bandlücke wandern, bis sie schließlich ins dielektrische Band eintritt und nicht mehr lokalisiert ist.

Für die Kopplung eines Emitters an eine Resonatormode ist unter anderem entscheidend, dass das Feldmaximum der Mode möglichst am Ort des Emitters vorliegt. Dies ist eine Grundvoraussetzung für einen hohen Purcell-Faktor als Maß für die Güte der Emitter-Resonator-Kopplung (Kapitel 3). Folglich sind Donatormoden gegenüber Akzeptormoden klar im Vorteil. Werden ein oder mehrere Luftzylinder mit Diamant ausgefüllt, so konzentriert sich das elektrische Feld der Mode weitestgehend im Bereich des Diamanten und insbesondere außerhalb der Luftzylinder [212]. Wird ein Farbzentrum an dieser Position eingebracht, so kann die Kopplung maximiert werden. Eine Akzeptormode hingegen hat ihr Feldmaximum am Ort des vergrößerten Luftzylinders. Das Erzeugen eines NV-Zentrums im Feldmaximum ist daher prinzipiell nicht möglich. Daher wird sich in den nachfolgenden Betrachtungen auf Resonatortypen mit Donatormoden beschränkt.

Resonatortypen

Im Folgenden wird ein Überblick über die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Resonatortypen gegeben. Punktdefektoresonatoren mit Donatormoden werden nach der Anzahl der fehlenden

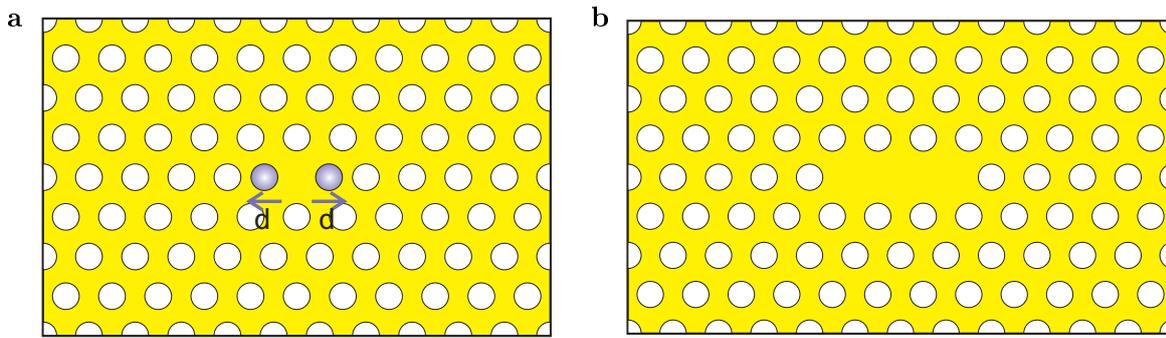


Abbildung 4.6: Punktdefekte als Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen. (a) Erzeugung eines M0-Resonators durch Verschieben zweier direkt benachbarter Luftzylinder im hexagonalen Gitter einer photonischen Kristallstruktur. (b) Erzeugung eines M3-Resonators durch Entfernen dreier Luftzylinder im ansonsten periodischen hexagonalen Kristallgitter. Analog wird ein Resonator bei i fehlenden Luftzylindern in einer Reihe als M_i -Resonator bezeichnet.

Luftzylinder im hexagonalen Gitter benannt. Fehlt kein Luftzylinder, so spricht man von einem M0-Resonator. Ein M0-Resonator kann etwa erzeugt werden, indem in einer periodischen Struktur zwei benachbarte Luftzylinder auseinandergeschoben werden [87, 213], wie in Abbildung 4.6a exemplarisch dargestellt ist. Ein M0-Resonator ist anfällig für Fabrikationsabweichungen und weist lediglich eine einzige Donatormode auf. Allerdings zeigt diese Mode in Simulationen vielversprechende Eigenschaften. Ein durch Riedrich-Möller et al. [87] entwickeltes optimiertes Design weist beispielsweise eine Mode mit einem simulierten Gütefaktor von $Q = 320\,000$ bei einem sehr kleinen Modenvolumen von $V = 0,35 (\lambda/n)^3$ auf. Diese ausgezeichnete räumliche Lokalisierung der Mode in Verbindung mit dem hohen Gütefaktor führt zu einem theoretisch vorhergesagten Purcell-Faktor von $F = 69\,000$. Aufgrund der angesprochenen Anfälligkeit des M0-Resonators hinsichtlich Fabrikationsabweichungen liegen die experimentell erreichten Gütefaktoren jedoch deutlich niedriger. Schröder et al. [85] konnten beispielsweise Gütefaktoren zwischen $Q = 1000$ und $Q = 2000$, mit positiven Ausreißern bis hin zu $Q = 3950$ experimentell erzielen.

Neben M0-Resonatoren wurden im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich M3 und M7-Resonatoren simuliert und hergestellt. Diese Resonatortypen entstehen durch das Entfernen von drei bzw. sieben direkt benachbarten und linear angeordneten Luftzylindern aus der ansonsten periodischen photonischen Kristallstruktur, wie exemplarisch für einen M3-Resonator in Abbildung 4.6b dargestellt ist. Deren Moden weisen zwar nicht so kleine Modenvolumina und damit gute räumliche Lokalisierungen auf als etwa die Mode eines M0-Resonators, M3 und M7-Resonatoren haben sich dennoch aufgrund ihrer Unanfälligkeit gegenüber Fabrikationsabweichungen ebenfalls bewährt. Wie in Kapitel 6 noch ausführlich dargelegt wird, sind bei der Herstellung photonischer Kristallstrukturen produktionsbedingte Schwankungen nicht auszuschließen und bezüglich Fabrikationsabweichungen unempfindliche Resonatoren daher wünschenswert.

Darüber hinaus bringt die vergrößerte Resonatorfläche der M3 und M7-Resonatoren einen entscheidenden Vorteil mit sich. Das kleinstmögliche Resonatorvolumen zur Führung wenigstens einer einzigen Resonatormode ergibt sich, wenn die Länge des Resonators in einer Dimension der

halben Wellenlänge entspricht. Für einen dreidimensionalen Resonator gilt folglich [211]:

$$V_{\text{Res,min}} = \left(\frac{\lambda}{2n}\right)^3 = 0,125 \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 . \quad (4.54)$$

Je größer das Resonatorvolumen ist, desto mehr geführte Moden kann ein Resonator aufweisen. Während ein M0-Resonator von Natur aus nur eine einzige Mode zeigt, sind bei M3 und M7-Resonatoren stets mehrere Moden in der Bandlücke lokalisiert. Dies erhöht die Wahrscheinlichkeit, trotz Fabrikationsabweichungen eine Mode mit hohem Gütefaktor spektral in der Nähe der Nullphononenlinie des NV-Zentrums zu erhalten. Folglich sind M3 und M7-Resonatoren für *proof-of-principle* Experimente bestens geeignet. Ferner eignen sich diese Strukturen um etwa zu testen, wie regelmäßig Lochstrukturen fabriziert werden können oder wie sich Fabrikationsabweichungen auf die verschiedenen Moden auswirken.

M3-Resonatoren wurden bereits 2003 von Akahane et al. [214] in einer Siliziumschicht hergestellt und untersucht. Nach ersten Optimierungen der umgebenden Lochreihen wurden simulierte Gütefaktoren von $Q = 260\,000$ bei einem Modenvolumen von $V = 0,7(\lambda/n)^3$ erreicht [215]. In der experimentellen Realisierung konnten immerhin noch Gütefaktoren von $Q = 100\,000$ gemessen werden. Song et. al [216] zeigten, dass es sogar möglich ist in die Mitte des Resonators ein kleines Luftloch zu platzieren, in das ein in Silizium eingekapselter Quantenpunkt eingebracht werden kann. Mithilfe von Optimierungen der umgebenden Lochreihen konnten dabei immerhin noch Gütefaktoren von $Q = 50\,000$ trotz des Luftlochs in der Mitte der photonischen Kristallstruktur realisiert werden. In Diamant werden bei diesem Resonatortyp materialbedingt geringere simulierte Gütefaktoren erzielt. Tomljenovic-Hanic et al. [217] erreichten in einer Diamantschicht bei gleicher Optimierungsmethode wie Akahane et al. [215] simulierte Gütefaktoren von $Q = 30\,000$. Heutzutage in einkristallinem Diamant hergestellte optimierte M3-Resonatoren weisen Gütefaktoren von durchaus $Q = 3000$ gemessen von Faraon et al. [81] bis hin zu $Q = 8000$ gemessen von Schröder et al. [85] auf. Der im Vergleich zum M0-Resonator geringere Einfluss von Fabrikationsabweichungen auf den Gütefaktor lässt sich durch Vergleich der jeweils gemessenen mit den simulierten Gütefaktoren bei M0-Resonatoren versus M3-Resonatoren gut erkennen.

M7-Resonatoren waren aufgrund ihrer Unanfälligkeit gegenüber Fabrikationsabweichungen die ersten hergestellten photonischen Kristallresonatoren in Diamant, in denen Moden spektral nachgewiesen werden konnten. Wang et al. [218] gelang diese Messung bereits im Jahre 2007 mit in nanokristallinem Diamant hergestellten Strukturen. Die Moden wiesen moderate Gütefaktoren von bis zu $Q = 585$ auf. Verbesserte Fabrikationstechniken erlaubten Li et al. [219] im Jahre 2015 die Herstellung von M7-Resonatoren mit experimentell gemessenen Gütefaktoren von bis zu $Q = 4700$. Der M7-Resonator weist wie bereits angesprochen mehrere lokalisierte Moden innerhalb der photonischen Bandlücke mit Modenvolumina von etwa $V = 1,5(\lambda/n)^3$ auf.

4.3.2 Simulationsmethodik

In diesem Abschnitt wird das Programm *Meep* eingeführt, eine frei verfügbare Simulationssoftware des Massachusetts-Institut für Technologie (MIT) [220]. *Meep* arbeitet mit der Methode der finiten Differenzen im Zeitbereich (*finite difference time domain*, FDTD). Derartige zeitaufgelöste Algorithmen sind prädestiniert für die in dieser Arbeit gestellten Anforderungen wie etwa das Simulieren elektromagnetischer Felder, die Berechnung abgestrahlter Leistungen oder die Bestimmung von Gütefaktoren und Modenvolumina der Resonatormoden. Im Folgenden wird zunächst der FDTD-Algorithmus erläutert. Im Anschluss daran wird auf spezifische Funktionen und Anwendungen des in diesem Abschnitt eingesetzten Programms *Meep* eingegangen. In Kapitel 7 wird das kommerziell erhältliche Simulationsprogramm *Lumerical* eingesetzt werden, das ebenfalls mit dem FDTD-Algorithmus arbeitet. Die folgenden Ausführungen zum FDTD-Algorithmus gelten für beide Programme. Spezifische Funktionen von *Lumerical* werden in Kapitel 7 näher erläutert.

Diskretisierung in Raum und Zeit

Der FDTD-Algorithmus ist in seiner Umsetzung in *Meep* und auch *Lumerical* ein stabiler, vielseitiger Algorithmus, der etwa die Implementierung einer Vielzahl von Randbedingungen oder auch Materialien zulässt. In *Meep* und auch *Lumerical* wird das Simulationsvolumen mit einem Yee-Gitter, benannt nach Kane S. Yee [221], diskretisiert. Die elektromagnetischen Felder werden dadurch ebenfalls in Raum und Zeit diskretisiert und die räumlichen und zeitlichen Ableitungen der Felder auf diesen kurzen Abschnitten linearisiert.

Nach Anregung in Form eines kurzen Energiepulses durch einen implementierten Emitter wird jede Feldkomponente in einem Abstand von einem halben Pixel (Abbildung 4.7) an unterschiedlichen Orten im Gitter durch direktes Lösen der Maxwellgleichungen berechnet. Der numerische Trick bei der räumlichen Diskretisierung mithilfe des FDTD-Algorithmus in *Meep* und *Lumerical* besteht nun darin, dass das Gitter zusätzlich in größere Einheiten, sogenannte *chunks*, aufgeteilt wird. Die einzelnen Einheiten überlappen dabei mit genau einem halben Pixel, sodass eine Synchronisierung zwischen den Einheiten möglich wird. Dies bietet den erheblichen Vorteil, dass jede dieser Einheiten auf einem separaten Prozessor berechnet werden kann und somit viele Prozessschritte parallel ablaufen können. Die Gitterpunkte innerhalb einer solchen Einheit werden in zwei Klassen unterteilt. Zugeteilte Punkte gehören eindeutig zu einer Einheit, während die nicht zugeteilten Punkte auf dem Rand liegen und somit mehreren *chunks* angehören. Die nicht zugeteilten Punkte sind für die Synchronisierung zwischen den *chunks* zuständig.

Neben der räumlichen Diskretisierung im Yee-Gitter erfolgt beim FDTD-Algorithmus auch eine zeitliche Diskretisierung. Das elektromagnetische Feld wird zeitlich derart aufgeteilt, dass das elektrische Feld zu einem Zeitpunkt $t - \Delta t$ und das magnetische Feld zu einem späteren Zeitpunkt $t - \Delta t/2$ simuliert und aus diesen Daten dann das elektromagnetische Feld zum Zeitpunkt t näherungsweise berechnet wird. In *Meep* verhält sich die räumliche zur zeitlichen Auflösung im Regelfall 1 zu 2. Wird folglich in einer dreidimensionalen Simulation die Auflösung verdoppelt, so wird der Bedarf an Speicherplatz achtmal, die Simulationsdauer sogar sechzehnmal so groß. Daher muss die Auflösung wohlüberlegt gewählt werden. In *Lumerical* verhält sich die räumliche

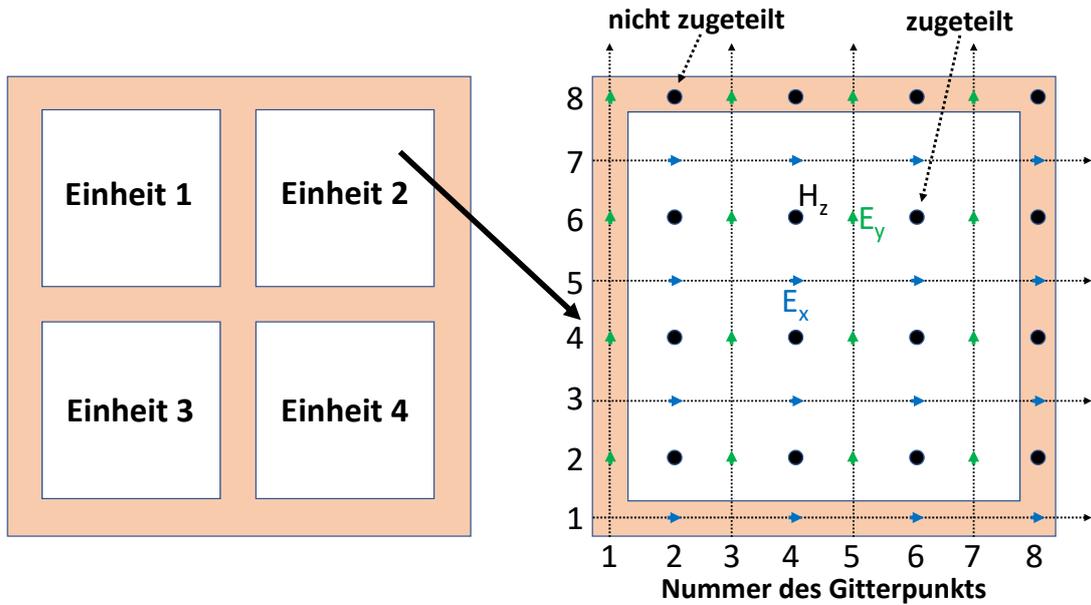


Abbildung 4.7: Yee-Gitter nach Oskooi et al. [220]. Die Simulationseinheit wird wie im linken Teil des Bildes dargestellt in größere Einheiten (*chunks*) aufgeteilt. Diese Einheiten überlappen mit genau einem halben Pixel bzw. einem Gitterpunkt. Wie im rechten Bild dargestellt ist werden die einzelnen Feldkomponenten in einem *chunk* in den Gitterpunkten ermittelt. Die Gitterpunkte liegen in einem Abstand von einem halben Pixel. Punkte, die genau in einem *chunk* liegen, werden als zugeteilte Punkte bezeichnet, Punkte auf den gemeinsamen Rändern als nicht zugeteilt.

zur zeitlichen Auflösung im Regelfall 1 zu 1. Das Verhältnis von räumlicher zu zeitlicher Auflösung kann mithilfe eines implementierten dt -Stabilitätsfaktors frei gewählt werden. Ebenso ist in Meep die Wahl eines anderen Auflösungsverhältnisses möglich.

Ähnlich wie bei MPB bringen auch bei Meep und Lumerical Symmetrien Rechenvorteile mit sich. Nicht nur die Inversionssymmetrie, sondern auch Spiegel- und Rotationssymmetrien können gezielt gefordert werden. Durch Symmetrien kann der tatsächlich simulierte Anteil an der Simulationseinheit verkleinert werden. Jede Spiegelsymmetrie führt beispielsweise zu einer Halbierung der zu berechnenden *chunks*, somit werden nur halb so viel Rechenzeit und Speicherplatz benötigt. Zu beachten ist dabei stets ein eventuell auftretender Phasensprung von elektrischem oder magnetischem Feld durch Spiegelung an einer Ebene. Die Felder können dennoch in jedem gewünschten Punkt der Simulationseinheit ausgegeben oder über einen beliebigen Bereich integriert werden, selbst wenn die Felder im Yee-Gitter etwa aufgrund von gewählten Symmetrien nicht für jeden Raumpunkt gespeichert sind. Die Lösung wird als lineare Interpolation der Felder im Yee-Gitter realisiert, bei Integration über Raumbereiche werden entsprechend die linearen Interpolationen über den Raumbereich integriert. Dies ist möglich, da der FDTD-Algorithmus selbst genauso wie die implementierte Interpolation Genauigkeit der Ordnung zwei aufweist.

Diese Genauigkeit zweiter Ordnung wird jedoch im Allgemeinen bei abrupten Übergängen zwischen zwei Materialien nicht mehr erreicht, in solchen Fällen liegt nur noch Genauigkeit erster Ordnung vor [220]. Derartige Übergänge sind jedoch bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuch-

ten photonischen Kristallstrukturen in Form von scharf begrenzten Übergängen von Diamant zu Luft etwa an den Kanten der Luftzylinder allgegenwärtig. Wird ein derartiger Übergang ohne Optimierung diskretisiert, so tritt ein stufenweiser Übergang zwischen zwei benachbarten Pixeln im Yee-Gitter auf, der wiederum zu unerwünschten numerischen Artefakten führen kann. Meep begegnet diesem Problem mit einem anpassenden Übergang (*subpixel smoothing*) in der Permittivität ε . Nähere Untersuchungen haben gezeigt, dass das Glättungsschema jedoch anisotrop sein muss, um keine Störungen erster Ordnung zu erhalten, ε wird folglich zu einer tensoriellen Größe. Somit wird selbst eine vollkommen isotrope Struktur durch dieses Verfahren anisotrop diskretisiert [220]. In Lumerical wird das Problem abrupter Übergänge derart gelöst, dass die Dichte des Yee-Gitters lokal verändert werden kann. Während in Meep die Gitterauflösung für die gesamte Simulationszelle gilt, kann in Lumerical etwa um einen kreisrunden Luftzylinder herum ein lokal feineres Gitter gewählt werden.

Die Simulationszelle wird durch vorgegebene Randbedingungen eingegrenzt. Dafür gibt es zahlreiche Möglichkeiten, von perfekt absorbierenden Schichten (*perfectly matched layers*, PML) über Bloch-periodische Randbedingungen (*Bloch-periodic boundaries*) bis hin zu metallischen Umgebungen (*metallic walls*). Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten photonischen Kristallstrukturen in Diamant stellen PML-Schichten eine geeignete Randbedingung dar. An dieser Stelle ist anzumerken, dass sowohl in Meep als auch in Lumerical keine vollständig absorbierenden Randbedingungen implementiert werden, sondern lediglich ein künstliches absorbierendes Material innerhalb der Simulationszelle eingefügt wird. Daher muss in den Simulationen stets darauf geachtet werden, dass an den Rändern der Simulationszelle keine Reflexionen mit damit einhergehenden numerischen Problemen vorliegen.

Berechnung von Gütefaktoren in Meep

In Kapitel 3 wurde der Gütefaktor Q in Gleichung (3.18) wie folgt definiert:

$$Q = \frac{\omega_R}{\Delta\omega_R}.$$

Der Gütefaktor Q ist somit als Verhältnis der Modenfrequenz ω_R zur Halbwertsbreite $\Delta\omega_R$ festgelegt. Durch Anpassen der Emissionslinie in einem Photolumineszenzspektrum mit einer Lorentzkurve können etwa Zentralfrequenz und Halbwertsbreite einer Mode bestimmt und der Gütefaktor der Mode anschließend berechnet werden.

Zur Bestimmung der simulierten Resonanzfrequenz ω_R und des Gütefaktors Q der Resonatormoden verwendet Meep ein Zusatzpaket namens *harminv* [222]. Dieses Paket basiert auf einer Filter-Diagonalisierungsmethode. In der Simulationszelle werden an verschiedenen Analysepunkten Detektoren eingefügt, die die elektromagnetischen Felder zu jedem Zeitschritt t_n ($n = 1, \dots, N$) für endlich viele Zeitschritte $N \in \mathbb{N}$ berechnen. Zur Analyse werden die Felder in eine endliche Summe aus ebenen Wellen $f(t_n) = \sum_{j=1}^J a_j e^{-i\omega_{Rj}t_n}$ zerlegt und die unbekannt komplexen Amplituden a_j und Frequenzen $\omega_{Rj} = \omega_{Rjr} + i\omega_{Rji}$ durch harmonische Inversion des Signals bestimmt. Der Realteil ω_{Rjr} von ω_{Rj} entspricht dabei der Resonanzfrequenz der j -ten Mode in Vielfachen von $2\pi c/a$ mit der Gitterkonstante a . Der Imaginärteil ω_{Rji} von ω_{Rj} beschreibt das

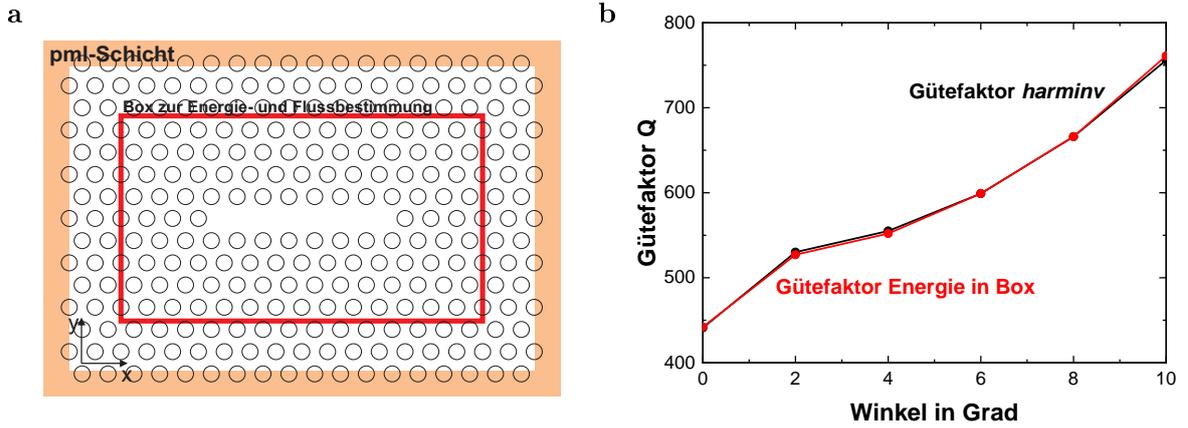


Abbildung 4.8: Exemplarische Bestimmung des Gütefaktors. (a) Ein M7-Resonator wird in der implementierten photonischen Kristallstruktur durch das Entfernen von sieben Luftzylindern erzeugt. Um den Resonator herum wird eine Box zur Energie- und Energieflussbestimmung gelegt (rotes Rechteck). (b) Wie in Kapitel 6 noch dargestellt wird, weisen die Löcher in hergestellten Strukturen eine Keilform auf. Der Gütefaktor einer Mode wurde hier exemplarisch in Abhängigkeit des Winkels der Keilform der Löcher bestimmt, sowohl über die Energie und Energieflussbestimmung in der implementierten Box als auch mithilfe des Pakets *harminv*.

zeitliche Abklingen der Modenfelder. Der Gütefaktor der j -ten Resonatormode kann im Anschluss wie folgt berechnet werden [223]:

$$Q = -\frac{\operatorname{Re}(\omega_{Rj})}{2 \operatorname{Im}(\omega_{Rj})}. \quad (4.55)$$

Ferner kann der Gütefaktor Q einer Resonatormode in Simulationen auf nachfolgende, vollkommen äquivalente Art und Weise ermittelt werden [224]:

$$Q = \frac{\omega_R \mathcal{E}}{-\partial \mathcal{E} / \partial t}. \quad (4.56)$$

Der Gütefaktor kann somit in Meep etwa bestimmt werden, indem eine Box von Energiemonitoren um den Resonator gelegt wird. Die innerhalb der Box gespeicherte Energie \mathcal{E} sowie der Energiefluss $-\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t}$ aus der Box heraus werden bestimmt und der Gütefaktor anschließend berechnet. Anhand einer exemplarischen Simulation eines M7-Resonators in Abbildung 4.8a lässt sich erkennen, dass die durch *harminv* bestimmten Gütefaktoren mit den Werten aus den Energiebetrachtungen in einer Box gut übereinstimmen. Aufgrund der einfacheren Umsetzung in Meep werden die Gütefaktoren im Folgenden stets mithilfe des Pakets *harminv* bestimmt.

Berechnung von Modenvolumina in Meep

Ein weiterer wichtiger Parameter einer Resonatormode ist das Modenvolumen V , das üblicherweise in Vielfachen der kubischen Wellenlänge $(\lambda/n)^3$ angegeben wird. Je kleiner der Raum ist, in dem eine gewisse Energiemenge lokalisiert ist, desto stärker ist eine eventuelle Kopplung ei-

nes Farbzentrums an eine Resonatormode. Somit ist es stets von Interesse, ein möglichst kleines Modenvolumen zu erhalten. Das Modenvolumen ist dabei wie in Kapitel 3 eingeführt wie folgt definiert [195]:

$$V = \frac{\int \varepsilon(\vec{r}) |\vec{E}(\vec{r})|^2 d^3\vec{r}}{\max \left(\varepsilon(\vec{r}) |\vec{E}(\vec{r})|^2 \right)}. \quad (4.57)$$

In Meep erfolgt die Bestimmung des Modenvolumens wiederum mithilfe einer um den Resonator herum gelegten dreidimensionalen Box. Die Mode wird mit der Resonanzfrequenz ω_R angeregt und das elektrische Feld innerhalb der Box bestimmt. Aus diesen Daten kann das Modenvolumen unmittelbar berechnet werden.

4.3.3 Moden des unoptimierten M7-Resonators

Ein M7-Resonator wird in einer photonischen Kristallstruktur durch einem Defekt bestehend aus sieben in einer Linie angeordneten fehlenden Luftzylindern erzeugt. Die meisten Experten sprechen hierbei immer noch von einem Punktdefekt, wie etwa Akahane et al. [215], andere bezeichnen den M7-Resonator bereits als Wellenleiterschchnitt, wie etwa Zhang et al. [213].

Die zu Grunde liegende photonische Kristallstruktur besteht aus hexagonal angeordneten Luftzylindern mit Radius $R = 0,31 a$ in einer Diamantschicht der Höhe h . Die Gitterkonstante und somit auch die Dicke des simulierten Diamantfilms werden so gewählt, dass die Fundamentalmode des M7-Resonators in Resonanz mit der Nullphononenlinie des NV-Zentrums bei 637 nm liegt. Wird die Gitterkonstante etwa zu $a = 215$ nm festgelegt, so ergibt sich die passende simulierte Schichtdicke zu $h = 1,1 a$ bzw. $h = 235$ nm. Derart dünne Diamantmembranen sind mithilfe verfügbarer Nanofabrikationstechniken herstellbar, im Rahmen dieser Arbeit produzierte Diamantfilme können sogar Dicken bis hinunter zu 150 nm aufweisen (siehe Kapitel 6). Die Simulationszelle wird wie in Abbildung 4.8a dargestellt $20 a$ lang, $8 \cdot \sqrt{3} a$ breit und $8 a$ hoch gewählt mit einer $1 a$ dicken PML-Schicht als Randbedingung. Die numerische Auflösung in den Simulationen beträgt 20 Pixel pro Gitterkonstante a .

Zur Bestimmung der Frequenzen der lokalisierten Moden wird in separaten Simulationen jeweils eine der drei TE-Feldkomponenten (E_x , E_y , H_z) breitbandig mit Frequenzen innerhalb der photonischen Bandlücke durch einen im Zentrum des Resonators positionierten Dipolemitter eingestrahlt. Nach Abklingen der Anregung wird die Resonanzfrequenz ω_R der Moden bestimmt und darüber hinaus der Gütefaktor Q sowie das Modenvolumen V der Resonatormoden ermittelt. Somit kann nach Gleichung (3.32) auch der ideale Purcell-Faktor F als Maß für die Güte der Kopplung eines potenziellen Emitters an die jeweilige Resonatormode berechnet werden.

In Tabelle 4.1 sind die Simulationsergebnisse für die Moden des M7-Resonators dargestellt. Die Resonatormoden werden nach Kim et al. [225] in gerade (*even*) und ungerade (*odd*) Moden klassifiziert und mit aufsteigender Frequenz beginnend bei *e1* bzw. *o1* durchnummeriert. Die Klassifizierung richtet sich nach der z -Komponente des magnetischen Feldes der angeregten Mo-

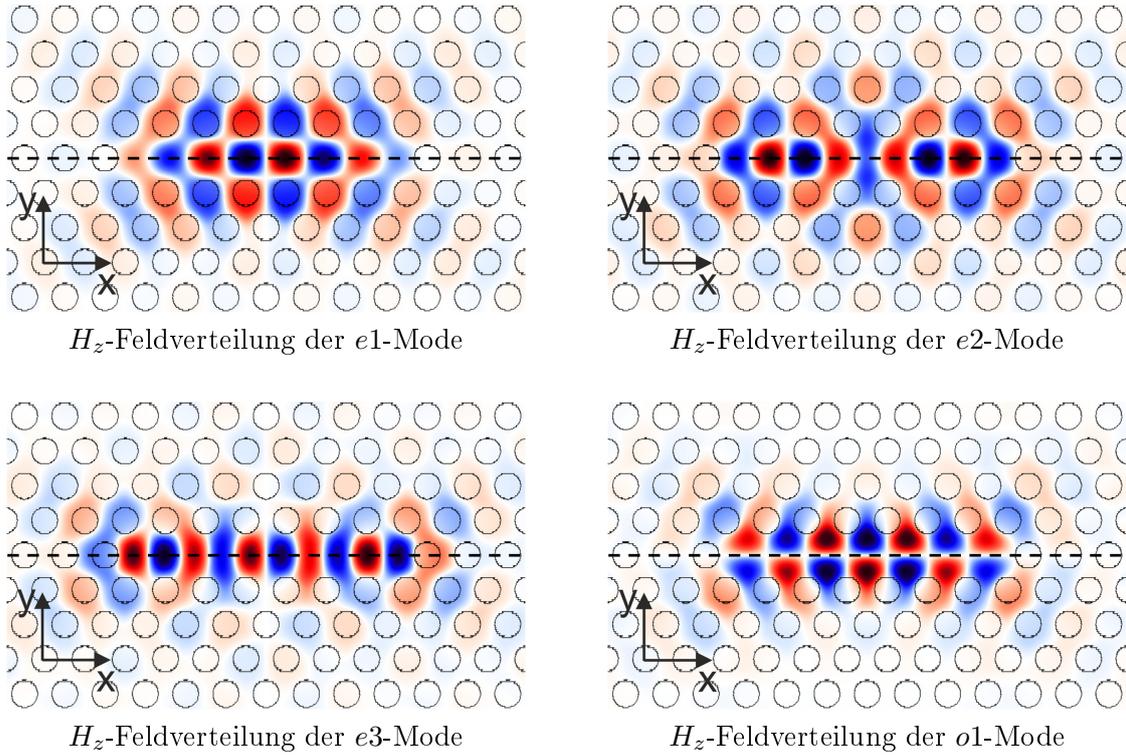


Abbildung 4.9: H_z -Feldverteilungen in der xy -Ebene von vier Moden des M7-Resonators. Die eingezeichnete Resonatorachse (gestrichelte Linie) erlaubt die Klassifizierung der Moden in gerade Moden (*even modes*) und ungerade Moden (*odd modes*) je nach Verhalten der H_z -Feldkomponente bei Spiegelung an der Resonatorachse. Die Intensität der Feldverteilung wurde für jedes Modenbild separat normiert.

de. Weist diese entlang der Resonatorachse Intensitätsmaxima auf, so ist die Mode spiegelsymmetrisch bezüglich der xz -Ebene. Die Mode wird per Konvention als gerade (*even*) bezeichnet, sonst als ungerade (*odd*). Den mit Abstand größten Gütefaktor weist die Fundamentalmode mit $Q_{e1} = 20\,405$ auf, gefolgt von der $e2$ -Mode mit $Q_{e2} = 1582$ sowie der $o1$ -Mode mit $Q_{o1} = 441$. Das Modenvolumen liegt bei allen Resonatormoden in der Größenordnung von $1,5(\lambda/n)^3$.

Die Moden des M7-Resonators

Mode	Anregung	ω_R in $2\pi c/a$	Q	V in $(\lambda/n)^3$	F
$e1$	E_y	0,3375	20 405	1,55	999
$e2$	H_z	0,3412	1 582	1,48	82
$e3$	E_y	0,3527	257	1,63	12
$o1$	E_x	0,3632	441	1,43	23
$o2$	E_x	0,3676	113	1,41	6
$e4$	H_z	0,3717	288	1,53	14

Tabelle 4.1: Resonanzfrequenz ω_R , Gütefaktor Q , Modenvolumen V und idealer Purcell-Faktor F für die sechs Moden niedrigster Frequenz des M7-Resonators innerhalb der photonischen Bandlücke zwischen dem ersten und zweiten TE-Band.

Die Lokalisierung der Moden kann darüber hinaus durch Ausgabe der Feldverteilungen qualitativ sichtbar gemacht werden. In Abbildung 4.9 sind exemplarisch die H_z -Feldverteilungen von fünf Moden dargestellt. Alle Moden sind etwa gleich gut lokalisiert und strahlen leicht in den Umgebungskristall ab. Auch die unterschiedlichen Symmetrien lassen sich anhand der Feldverteilungen leicht nachvollziehen. An dieser Stelle ist anzumerken, dass in Meep die Feldverteilungen erst einige Zeit nach Abklingen der Quelle ausgegeben werden. Dadurch wird sichergestellt, dass lediglich die im Resonator gespeicherten Feldkomponenten dargestellt werden.

4.3.4 Optimierung eines M3-Resonators

Um bei Kopplung eines Farbzentrums an eine Resonatormode einen hohen Purcell-Faktor und somit eine deutliche Überhöhung der spontanen Emissionsrate zu erzielen, sollte der Emitter an eine Resonatormode mit möglichst hohem Gütefaktor bei gleichzeitig möglichst kleinem Modenvolumen gekoppelt werden. Ziel dieses Abschnitts ist, die vertikalen Abstrahlungsverluste eines M3-Resonators in einer Diamantmembran durch Verschieben oder auch Ändern der Radien der umgebenden Luftzylinder zu minimieren und somit die Gütefaktoren der Resonatormoden bei idealerweise gleichbleibenden Modenvolumina zu erhöhen. Die hierzu angewendete Optimierungsmethodik für photonische Kristallstrukturen basiert auf dem Prinzip des *gentle confinement* [226]. Nach dieser Theorie führt eine scharfe räumliche Begrenzung der Mode zu Verlusten, während ein sanftes Abklingen der Modfelder an den Rändern des Resonators geringere Verluste und somit höhere Gütefaktoren nach sich zieht. Die optimale Feldverteilung einer Mode wird dabei durch eine sinusförmige Funktion, amplitudenmoduliert mit einer gaußförmigen Einhüllenden beschrieben. Die Verluste durch Emission innerhalb des Lichtkegels im k -Raum nehmen folglich ab, der Gütefaktor erhöht sich. Je kleiner das Modenvolumen einer Resonatormode ist, desto stärker sind die zu erwartenden Auswirkungen auf den Gütefaktor durch eine Optimierung mithilfe des Prinzips des *gentle confinement* [214]. Daher sind der M0-Resonator und auch der M3-Resonator vielversprechende Kandidaten für die Anwendung dieser Optimierungsmethodik.

Der unoptimierte M3-Resonator

Die untersuchte photonische Kristallstruktur besteht aus hexagonal angeordneten Luftzylindern mit Radien von $R = 0,29a$, wobei drei direkt benachbarte und in einer Linie angeordnete Luftzylinder zur Erzeugung eines M3-Resonators entfernt wurden. Das hexagonale Gitter weist für den gewählten Zylinderradius eine große Bandlücke zwischen dem ersten und zweiten TE-ähnlichen Band von $\omega = 0,3292 \cdot 2\pi c/a$ bis $\omega = 0,3901 \cdot 2\pi c/a$ reichend auf, dies entspricht einer relativen Breite von 16,9%. In anderen Untersuchungen, siehe etwa Akahane et al. [215] oder Tomljenovic-Hanic et al. [217], konnten für M3-Resonatoren in photonischen Kristallen ferner mit dem gewählten Hintergrundradius von $R = 0,29a$ die höchsten Gütefaktoren erzielt werden. Die durchgeführten Simulationen erfolgten erneut in einer Simulationszelle der Länge $20a$, Breite $8 \cdot \sqrt{3}a$ und Höhe $8a$ mit einer $1a$ dicken PML-Schicht als Randbedingung. Für den gewählten Zylinderradius weist die Fundamentalmode des unoptimierten M3-Resonators bei einer Schicht-

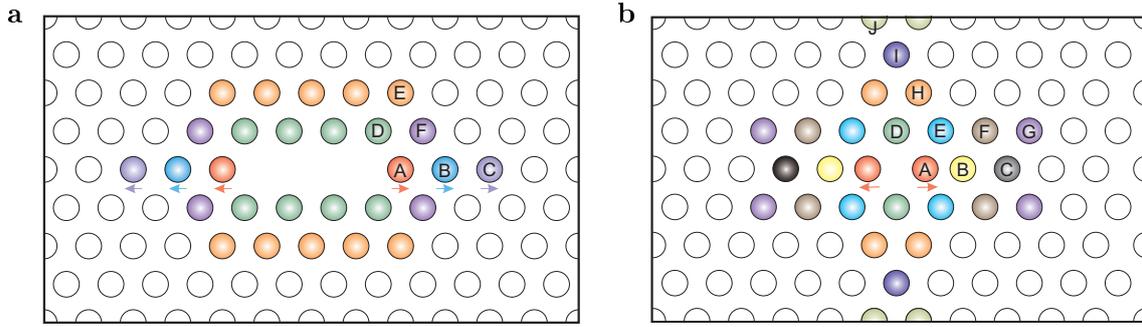


Abbildung 4.10: Übersicht über die zu optimierenden Luftzylinder (a) des M3-Resonators (b) des M0-Resonators. Die Radien der eingefärbten Luftzylinder wurden verändert, ausgewählte Luftzylinder zusätzlich in Pfeilrichtung verschoben.

dicke von $h = 1,1a$ eine spektrale Position von $\omega_R = 0,3376 \cdot 2\pi c/a$ auf, die mit der Frequenz der Fundamentalmode des ebenfalls untersuchten M7-Resonators übereinstimmt. Folglich kann bei Wahl einer Gitterkonstanten von ebenfalls $a = 215 \text{ nm}$ erneut eine spektrale Position der Fundamentalmode von 637 nm erzielt werden.

In Tabelle 4.2 sind die Simulationsergebnisse für die Moden des unoptimierten M3-Resonators dargestellt. Die Fundamentalmode weist mit $Q_{e1} = 936$ den höchsten Gütefaktor auf, wohingegen die weiteren untersuchten Resonatormoden deutlich geringere Gütefaktoren zeigen. Die $e1$ -Mode weist darüber hinaus mit $V_{e1} = 0,77 (\lambda/n)^3$ das mitunter beste Modenvolumen aller im Rahmen dieser Arbeit simulierten Moden auf und ist daher insgesamt für die potenzielle Kopplung an NV-Zentren sehr gut geeignet.

Der optimierte M3-Resonator

Im Folgenden wird durch Verschieben sowie Ändern der Radien ausgewählter Luftzylinder in unmittelbarer Umgebung des M3-Resonators die Feldverteilung der Fundamentalmode gemäß des Prinzips des *gentle confinement* modifiziert und der Gütefaktor der Fundamentalmode in Folge dessen maximiert. In Abbildung 4.10a ist eine Übersicht über die zu optimierenden Luftzylinder gegeben. Als erste Optimierung werden die auf der Resonatorachse positionierten Luftzylinder

Die Moden des unoptimierten M3-Resonators

Mode	Anregung	ω_R in $2\pi c/a$	Q	V in $(\lambda/n)^3$	F
$e1$	E_y	0,3376	936	0,77	93
$o1$	E_x	0,3591	163	1,13	11
$o2$	E_x	0,3631	133	0,73	14
$e2$	H_z	0,3649	212	0,89	18
$o3$	H_z	0,3678	127	1,12	7

Tabelle 4.2: Resonanzfrequenz ω_R , Gütefaktor Q , Modenvolumen V und idealer Purcell-Faktor F der fünf Moden niedrigster Frequenz des unoptimierten M3-Resonators innerhalb der photonischen Bandlücke zwischen dem ersten und zweiten TE-Band.

A , B und C nach außen verschoben. Die Feldverteilung der Fundamentalmode wird dadurch entlang der Resonatorachse sanfter begrenzt, was gemäß des Prinzips des *gentle confinement* eine Erhöhung des Gütefaktors nach sich zieht. Der höchste Gütefaktor wird mit $Q = 4959$ für die Verschiebungsparameter $v_A = 0,2a$, $v_B = 0$ und $v_C = 0,1a$ erzielt. Durch die Optimierung der Resonatorgeometrie erhöht sich der Gütefaktor folglich um einen Faktor 5, jedoch ist zu beachten, dass auch das Modenvolumen mit $V = 0,93 (\lambda/n)^3$ aufgrund des sanfteren Abklingens des Modenfeldes in der umgebenden photonischen Kristallstruktur leicht zunimmt.

Im nächsten Schritt wird die Feldverteilung der $e1$ -Mode nochmals sanfter eingegrenzt. Dazu werden die Radien der vier direkt benachbarten Luftzylinder D oberhalb und unterhalb der Resonatorfläche zu $R_D = 0,25a$ verkleinert. Der Gütefaktor der Fundamentalmode erfährt eine weitere Steigerung auf $Q = 9137$ bei einem nahezu unveränderten Modenvolumen von $V = 0,95 (\lambda/n)^3$. In einem letzten Schritt werden schließlich noch die Radien der Luftzylinder A auf $R_A = 0,19a$ verkleinert, die Radien der Luftzylinder E zu $R_E = 0,33a$ vergrößert und die Luftzylinder B darüber hinaus um $v_B = 0,05a$ nach außen verschoben. Der Gütefaktor der $e1$ -Mode kann durch die dargelegten Optimierungen insgesamt auf $Q = 11850$ gesteigert werden. Weitere Optimierungsversuche etwa durch Verändern der Radien R_F bringen keine zusätzlichen Verbesserungen mit sich, die Optimierung des M3-Resonators ist somit abgeschlossen.

Eine abschließende Übersicht über die im optimierten M3-Resonator geführten Moden sowie ihre relevanten Kenngrößen ist in Tabelle 4.4 gegeben. Durch eine sanftere Begrenzung der Feldverteilung konnte eine deutliche Steigerung des Gütefaktors der Fundamentalmode von $Q_{e1} = 936$ auf $Q_{e1} = 11850$ erzielt werden, ein Anstieg um einen Faktor größer als 12. An dieser Stelle ist anzumerken, dass gleichzeitig auch das Modenvolumen der Fundamentalmode leicht von $V_{e1} = 0,77 (\lambda/n)^3$ auf $V_{e1} = 1,07 (\lambda/n)^3$ ansteigt, eine in Kauf genommene Zunahme um einen Faktor 1,4. Darüber hinaus konnten durch die erfolgten Optimierungen auch die Gütefaktoren der anderen Resonatormoden signifikant gesteigert werden.

In Abbildung 4.11a sind die Modenprofile sowie die fouriertransformierten Feldverteilungen der Fundamentalmode für einen unoptimierten und einen optimierten M3-Resonator zu Vergleichs-

Die Moden des optimierten M3-Resonators

Mode	Anregung	ω_R in $2\pi c/a$	Q	V in $(\lambda/n)^3$	F
$e1$	E_y	0,3315	11 850	1,07	838
$e2$	H_z	0,3426	1 310	1,01	99
$o1$	E_x	0,3494	630	1,13	42
$o2$	E_x	0,3544	274	0,79	26
$o3$	E_x	0,3609	245	1,06	18
$e3$	E_y	0,3677	2 079	0,99	160
$o4$	E_x	0,3758	366	1,22	21
$e4$	H_z	0,3893	622	3,89	12

Tabelle 4.3: Resonanzfrequenz ω_R , Gütefaktor Q , Modenvolumen V und idealer Purcell-Faktor F der Moden des optimierten M3-Resonators innerhalb der photonischen Bandlücke zwischen dem ersten und zweiten TE-Band.

zwecken gegenübergestellt. Wird zunächst einmal das Modenprofil der $e1$ -Mode der unoptimierten Struktur entlang der Resonatorachse betrachtet, so sind die Abweichungen von einer mit einer Gaußfunktion amplitudenmodulierten Sinusfunktion deutlich zu erkennen und zwar insbesondere bei $-3a$ sowie $3a$, dies entspricht dem rechten bzw. linken Rand des Resonators. Diese Abweichungen bedeuten stets Verluste und somit eine Verminderung des Gütefaktors. Wie anhand des Modenprofils der optimierten Struktur ersichtlich ist, konnten durch die dargelegten Optimierungen die Abweichungen von einer gaußförmigen Einhüllenden reduziert werden, insbesondere das Verschieben der benachbarten Luftzylinder auf der Resonatorachse hat hier zu einem sanfteren Abklingen des Modenfelds geführt. Das Modenprofil entlang der Resonatorachse wird nun nahezu perfekt von einer gaußförmigen Einhüllenden umschlossen.

Die Auswirkungen der Optimierungen lassen sich auch anhand der Fouriertransformierten der räumlichen Modenfelder der Fundamentalmode erkennen. In Abbildung 4.11b sind die eindimensionalen und in 4.11c die zweidimensionalen Fouriertransformierten vor und nach den erfolgten Optimierungen dargestellt. Die Modenfelder im k -Raum sind dabei wie bei Resonatoren mit Donatormoden üblich um die vier M -Punkte der Brillouinzone konzentriert. Diese Punkte haben in den zweidimensionalen Abbildungen die Koordinaten $(k_x|k_y) = 2\pi/a \cdot (\pm 1/2 | \pm 1/2\sqrt{3})$, bei den entlang der Resonatorachse berechneten eindimensionalen fouriertransformierten Modenfeldern der Fundamentalmode liegen die M -Punkte entsprechend bei $k_x = \pm\pi/a$. Die Modenfelder weisen jedoch auch stets einen Anteil innerhalb des Lichtkegels auf. Da Licht im Bereich des Lichtkegels abgestrahlt wird und somit zu Verlusten führt, ist zur Erhöhung des Gütefaktors eine Minimierung dieses Emissionsanteils wünschenswert. Sowohl in den eindimensionalen als auch in den zweidimensionalen Fourierbildern lässt sich eine Verringerung des Anteils im Lichtkegel durch die erfolgten Optimierungen erkennen. Während etwa in den zweidimensionalen fouriertransformierten Feldverteilungen der Fundamentalmode bei der unoptimierten Struktur der Anteil der Modenemission im Lichtkegel noch 5,7% beträgt, kann dieser Anteil bei einem optimierten M3-Resonator auf 0,3% vermindert werden.

In der Übersicht über die Moden des optimierten M3-Resonators in Tabelle 4.4 lässt sich ferner erkennen, dass drei zusätzliche geführte Moden, die $e3$ -Mode, die $o4$ -Mode sowie die $e4$ -Mode, nach Durchführung der Optimierungen detektiert werden können. Ursache hierfür ist, dass durch das erfolgte Verschieben von Luftzylindern nach außen sowie durch das Verkleinern von Zylinderradien der Anteil an Diamant im Bereich der Resonatorfläche erhöht und somit der Luftanteil am Materialmix verringert wird. Vormalig im Luftband verortete Moden werden am M -Punkt der Brillouinzone als Donatormoden in die Bandlücke gezogen und sind somit nach erfolgter Optimierung ebenfalls innerhalb der photonischen Bandlücke lokalisiert.

Des Weiteren kann durch Vergleich der spektralen Modenpositionen vor und nach erfolgter Optimierung auf eine Kreuzung der geraden $e2$ -Mode mit den beiden ungeraden Moden $o1$ und $o2$ geschlossen werden. Im Allgemeinen können zwei Wellenleitermoden unterschiedlicher Symmetrie nicht miteinander koppeln und folglich ungestört kreuzen, ohne dass etwa ihre Kurven in der Bandstruktur dadurch beeinflusst werden. Da auch der M3-Resonator als Wellenleiterschnitt betrachtet werden kann [227], ist die beobachtete Kreuzung der $e2$ -Mode somit erlaubt. Moden gleicher Symmetrie hingegen koppeln stark miteinander, in Folge dessen stoßen sich ih-

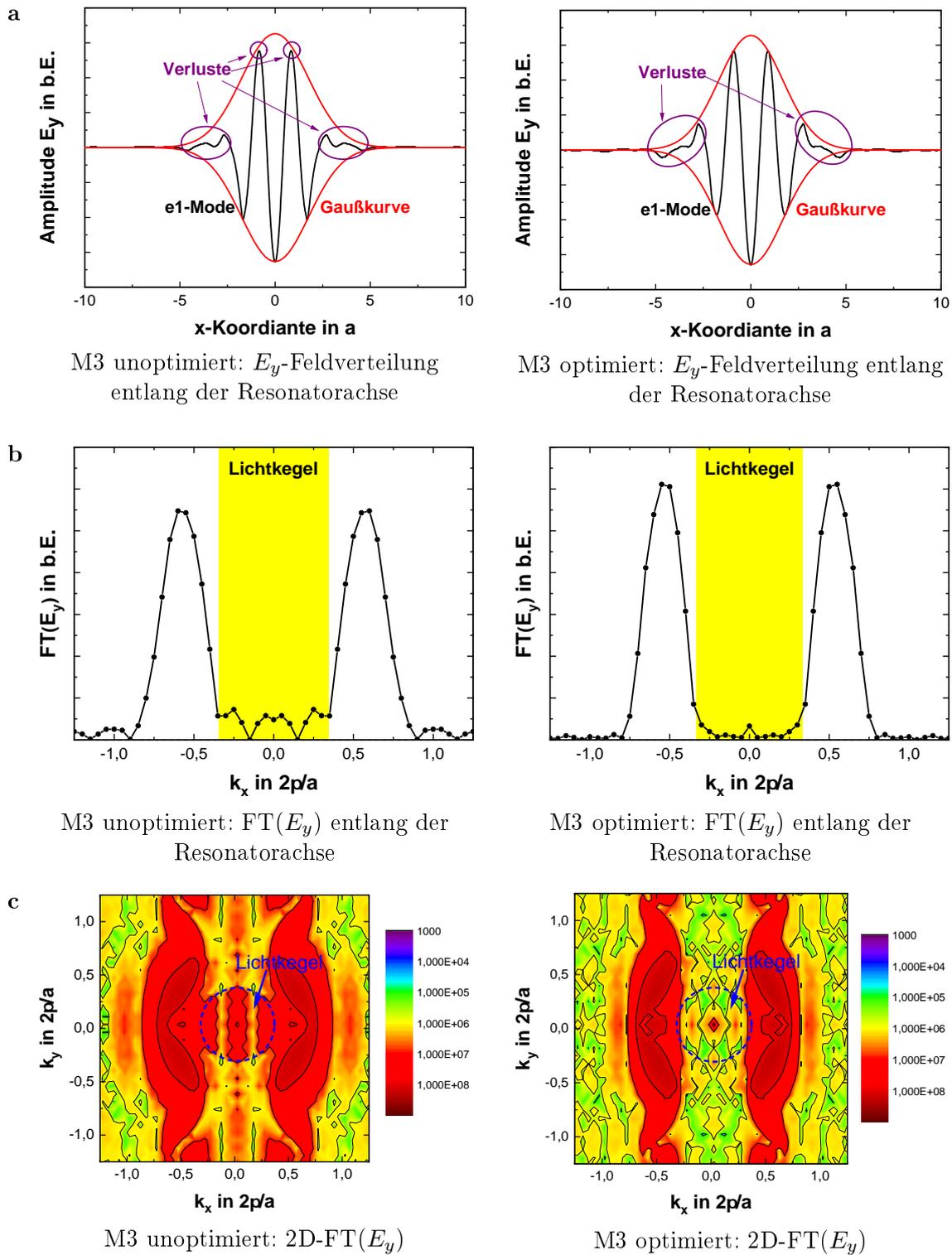


Abbildung 4.11: Vergleich der e_1 -Mode bei unoptimiertem (linke Abbildungen) versus optimiertem M3-Resonator (rechte Abbildungen). (a) Die schwarze Kurve stellt jeweils das Modenprofil entlang der Resonatorachse und die rote Kurve die Gaußsumhülle dar. Die violett markierten Zonen verdeutlichen die Verlustbereiche. (b) Eindimensionale Fouriertransformation $FT(E_y)$ entlang der Resonatorachse und (c) zweidimensionale Fouriertransformation $2D-FT(E_y)$. Die roten Bereiche kennzeichnen Bereiche hoher Intensität (in b.E.). Licht innerhalb des Lichtkegels wird im Resonator nicht geführt und abgestrahlt.

re Frequenzbänder ab. Eine Kreuzung zweier ungerader Moden bzw. zweier gerader Moden ist folglich nicht möglich. Da die geraden Moden ebenso wie die ungeraden Moden untereinander ihre Position im Frequenzraum nie tauschen können, ist die Benennung der Moden während der gesamten Optimierung somit stets konsistent. Nach jedem Optimierungsschritt kann eindeutig entschieden werden, welche Mode beispielsweise die $e2$ -Mode ist.

Abschließend stellt sich noch die Frage, ob nach erfolgter Optimierung des Resonators alle geführten Moden in den durchgeführten Simulationen detektiert wurden, oder ob unter Umständen sogar noch weitere innerhalb der Bandlücke lokalisierte Moden existieren, die in den Simulationen etwa lediglich schwer anzuregen sind. Wird der M3-Resonator im Folgenden wiederum als Wellenleiterausschnitt modelliert, so können die im Wellenleiterausschnitt geführten Moden als Fabry-Pérot Oszillationen aufgefasst werden. Die Lochreihen, die den Resonator entlang der Resonatorachse begrenzen, werden in diesem einfachen Modell als ebene Spiegel des Fabry-Pérot-Resonators aufgefasst [227]. Unter Vernachlässigung von Streuung und Absorption innerhalb des Resonators ist der Anteil des durch den Resonator transmittierten Lichts gegeben durch [194]:

$$\mathcal{T} = \frac{1}{1 + (4\mathcal{F}^2/\pi^2) \sin(\phi/2)^2} \quad (4.58)$$

mit der Finesse \mathcal{F} und der Phase

$$\phi = \frac{4\pi L}{\lambda}. \quad (4.59)$$

Der Resonator ist genau dann in Resonanz, wenn die Transmission 1 wird. Diese Bedingung ist für $\phi = 2\pi m$ mit $m \in \mathbb{Z}$ erfüllt. Somit gilt $L = m\lambda/2$, physikalisch sinnvoll mit $m \in \mathbb{N}^*$. Mit $\omega = a/\lambda$ ergibt sich der mittlere eindimensionale Frequenzabstand der Resonatormoden somit zu $\Delta\omega = a/2L$. Ein Resonator bestehend aus N fehlenden Luftzylindern in einem hexagonalen Gitter mit der Gitterkonstanten a weist eine Länge von etwa $L = (N + 1) \cdot a$ auf [225]. Die Länge des untersuchten M3-Resonator beträgt folglich etwa $4a$, für den mittleren Frequenzabstand der Moden gilt somit $\Delta\omega \approx 1/8$. Aufgrund der Periodizität des Gitters und der damit verbundenen Translationssymmetrie um Gittervektoren der Länge a sind folglich nur acht verschiedene Frequenzen ω_R möglich. Darüber hinaus muss für den Abstand der Wellenvektoren die Bedingung $\Delta k_x \approx \pi/4a$ erfüllt sein, im vorliegenden eindimensionalen Modell sind somit nur vier verschiedene k_x -Werte möglich. Durch das Modell des Fabry-Pérot-Resonators werden folglich vier gerade und vier ungerade nichtentartete Moden vorhergesagt. Wie bereits für den unoptimierten M3-Resonator dargelegt wurde, müssen diese Moden jedoch nicht alle geführt sein, die Moden können etwa auch im Luftband verortet als Verlustmoden (*leaky modes*) vorliegen. Für den optimierten M3-Resonator kann jedoch aufgrund der Ausführungen davon ausgegangen werden, dass in den Simulationen alle Moden als geführte Moden erfolgreich adressiert wurden.

Einfluss der Simulationsparameter auf Gütefaktor und Wellenlänge

Im Folgenden wird zunächst der Einfluss der Anzahl an umgebenden Lochreihen auf den Gütefaktor und auch die Wellenlänge der Fundamentalmode des M3-Resonators untersucht. Der

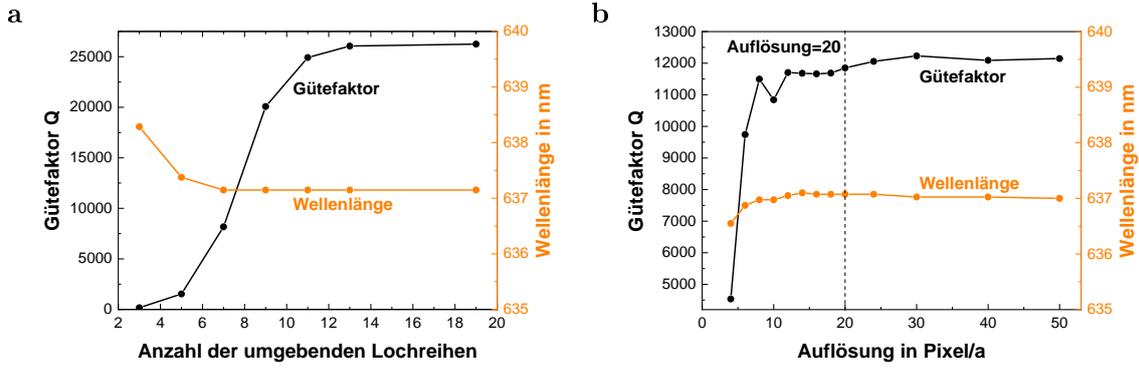


Abbildung 4.12: Abhängigkeit des Gütefaktors (schwarz) und der Wellenlänge (orange) der simulierten $e1$ -Mode (a) von der Anzahl der den Resonator umgebenden Lochreihen sowie (b) von der in Meep gewählten numerischen Auflösung.

Gütefaktor Q kann in einen Anteil innerhalb der Resonatorebene Q_{\parallel} und einen Anteil Q_{\perp} senkrecht dazu aufgespalten werden [228]. Wird die Anzahl an umgebenden Lochreihen hinreichend groß gewählt, so wird der Gütefaktor nur noch durch den vertikalen Anteil Q_{\perp} beschränkt.

Bislang wurde in den Simulationen eine Anzahl von acht den Resonator umgebenden Lochreihen gewählt, ein Kompromiss zwischen hohen Gütefaktoren und späterer Herstellbarkeit der simulierten photonischen Kristallstrukturen. An dieser Stelle stellt sich die Frage, welcher maximale Gütefaktor sich theoretisch bei einer unendlich großen Anzahl an umgebenden Luftzylindern ergeben würde. Dazu wurden der Gütefaktor und auch die Wellenlänge in Abhängigkeit von der Anzahl der den Resonator umgebenden Lochreihen für die $e1$ -Mode simuliert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.12a dargestellt. Der Gütefaktor beträgt bei drei umgebenden Lochreihen lediglich $Q = 171$, steigt mit zunehmender Anzahl der Umgebungsschichten zunächst stark an, bis ab etwa elf umgebenden Lochreihen eine Sättigung eintritt. Das theoretische Maximum des Gütefaktors der $e1$ -Mode liegt bei etwa $Q = Q_{\perp} = 26\,000$. Die spektrale Position der $e1$ -Mode variiert in Abhängigkeit der Anzahl an umgebenden Lochreihen erwartungsgemäß kaum und bleibt bereits ab fünf umgebenden Lochreihen nahezu konstant bei etwa 637 nm.

Darüber hinaus hat auch die gewählte numerische Auflösung Auswirkungen auf den simulierten Gütefaktor sowie die Wellenlänge der $e1$ -Mode. Wie bereits in Abschnitt 4.3.2 dargelegt wurde, wird das Simulationenvolumen in Meep durch ein Yee-Gitter in kleine, identisch große Bereiche (Pixel) diskretisiert. Die Auflösung gibt die Anzahl an Pixeln pro Gitterkonstante a an. Je größer die gewählte Auflösung ist, desto zuverlässiger sind folglich die ausgegebenen Werte. Allerdings steigt auch der Rechenaufwand mit zunehmender Auflösung bei den hier vorliegenden dreidimensionalen Simulationen in der dritten Potenz an. Wie in Abbildung 4.12b dargestellt ändert sich die Wellenlänge der $e1$ -Mode in Abhängigkeit der Auflösung kaum. Der Gütefaktor schwankt zunächst stark und bleibt ab einer Auflösung von 14 Pixeln pro Gitterkonstante relativ stabil bei $Q_{e1} = 12\,000$. Die in den durchgeführten Simulationen gewählte Auflösung von 20 Pixeln pro Gitterkonstante ist somit als vollkommen ausreichend für die untersuchten photonischen Kristallstrukturen anzusehen.

4.3.5 Der optimierte M0-Resonator

Im Rahmen dieser Arbeit wurden neben M7-Resonatoren und M3-Resonatoren zusätzlich auch M0-Resonatoren hergestellt und analysiert (Kapitel 6). Darüber hinaus wurde die Kopplung von NV-Zentren an die Resonatormode eines M0-Resonators untersucht (Kapitel 8 und 9). Da dieser Resonatortyp bereits durch Riedrich-Möller et al. [87] ebenfalls mithilfe des Prinzips des *gentle confinement* in Simulationen optimiert wurde, wird auf die konkrete Vorgehensweise bei der simulationsgestützten Optimierung im Folgenden nur kurz eingegangen.

Der unoptimierte M0-Resonator wird zunächst wie in Abbildung 4.6a dargestellt durch Verschieben zweier Luftzylinder um hier $d = 0,15 a$ erzeugt. Für Zylinderradien von $R = 0,26 a$ ergibt sich eine einzige gerade Mode bei $\omega_R = 0,3682 \cdot 2\pi c/a$ mit Gütefaktor $Q = 24\,500$ und Modenvolumen $V = 0,39 (\lambda/n)^3$. Wird erneut eine Schichtdicke von $h = 235$ nm angesetzt, so ergibt sich die spektrale Position der Mode bei Wahl einer Gitterkonstanten von $a = 260$ nm zu $\lambda = 637$ nm, der Wellenlänge der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums.

Die optimierten Luftzylinder sind in Abbildung 4.10b dargestellt. Die Luftzylinder A werden um insgesamt $d = 0,16 a$ nach außen verschoben. Ferner werden die Radien einiger Luftzylinder gegenüber dem Hintergrundradius von $R = 0,26 a$ verändert zu $R_C = 0,29 a$, $R_D = 0,22 a$, $R_E = 0,24 a$, $R_G = 0,27 a$, $R_I = 0,31 a$ und $R_J = 0,34 a$. Variationen der Zylinderradien R_F und R_H haben keine weitere Verbesserung des Gütefaktors mit sich gebracht. Die Kenndaten der Fundamentalmode nach allen Optimierungen sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst. Der Gütefaktor der $e1$ -Mode konnte signifikant um einen Faktor 13 auf einen Wert von $Q = 320\,000$ erhöht werden, ähnlich der für den M3-Resonator erzielten Steigerung des Gütefaktors um einen Faktor größer als 12. Das Modenvolumen der Fundamentalmode hat sich beim M0-Resonator durch die Optimierungen sogar noch etwas verkleinert auf $V = 0,35 (\lambda/n)^3$.

Aufgrund dieser bemerkenswerten Kenndaten stellt der optimierte M0-Resonator unter den drei betrachteten Resonatortypen von der Seite der Theorie her den vielversprechendsten Kandidaten für die Kopplung zwischen einer Resonatormode und einem NV-Zentrum dar. Dennoch haben auch die anderen beiden Resonatortypen im Experiment Vorteile aufzuweisen, wie etwa die angesprochene Unanfälligkeit gegenüber Fabrikationsabweichungen. Weicht beispielsweise der Durchmesser der Luftzylinder bei einem M3-Resonator um 5 nm vom angepeilten Durchmesser von etwa 133 nm ab, so wird der Gütefaktor der Fundamentalmode des M3-Resonators um lediglich 4% vermindert. Bei einem M0-Resonator hingegen hat eine derartige Abweichung im Durchmesser der Luftzylinder einen Rückgang des Gütefaktors der $e1$ -Mode um über 25% zur Folge. Jeder der betrachteten Resonatortypen weist folglich seine individuellen Stärken auf.

Die Mode des optimierten M0-Resonators

Mode	Anregung	ω_R in $2\pi c/a$	Q	V in $(\lambda/n)^3$	F
$e1$	E_y	0,3672	320 000	0,35	69 000

Tabelle 4.4: Resonanzfrequenz ω_R , Gütefaktor Q , Modenvolumen V und idealer Purcell-Faktor F der $e1$ -Mode des optimierten M0-Resonators.

5 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel werden die verwendeten Versuchsaufbauten mit ihren wesentlichen Bestandteilen zur optischen Anregung, Fluoreszenzdetektion und Spinmanipulation beschrieben. Kernbestandteil der eingesetzten Messaufbauten ist ein konfokales Mikroskop zur punktgenauen optischen Untersuchung der Diamantproben. Um die optische Analyse von sowohl NV-Zentren als auch Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen bei Raumtemperatur sowie Flüssigheliumtemperaturen zu ermöglichen, können sowohl das Objektiv des Konfokalmikroskops als auch die Probe selbst in einen Kryostaten eingebaut werden. Die im Rahmen dieser Forschungsarbeit eingesetzten experimentellen Anordnungen weisen zwar teilweise unterschiedliche Gerätschaften auf, die verwendeten Gerätetypen, ihre prinzipielle Funktionsweise und auch ihr Einsatzspektrum sind jedoch in den jeweiligen Aufbauten vergleichbar. Daher wird im Folgenden ein exemplarischer Versuchsaufbau ausführlich beschrieben und bei den weiteren verwendeten Experimentieranordnungen lediglich auf die relevanten Abweichungen eingegangen.

5.1 Optischer Messaufbau

Im Folgenden wird der optische Teil der Experimentieranordnung beschrieben. Nach einer Einführung in das Funktionsprinzip eines Konfokalmikroskops wird die Umsetzung der optischen Anregung im Versuchsaufbau dargelegt. Dabei wird insbesondere auf die verwendeten Laser sowie den akustisch-optischen Modulator (AOM) näher eingegangen. Im Anschluss daran werden die zur Detektion der Fluoreszenz eingesetzten Geräte sowie die beiden verwendeten Kryostaten mit ihren relevanten Kenndaten und jeweiligen Besonderheiten beschrieben. Anschließend wird auf eine weitere, ausschließlich für optische Messungen bei Raumtemperatur eingesetzte Experimentieranordnung eingegangen. In Abbildung 5.1 ist eine schematische Übersicht über den verwendeten Versuchsaufbau gegeben.

Optische Abbildungen mit einem Konfokalmikroskop

Herzstück des optischen Teils des Messaufbaus ist ein konfokales Mikroskop. Dieses besteht aus einem vertikal über der Probenoberfläche positionierten Objektiv sowie einer optischen Faser, die als Lochblende fungiert. Zur Beleuchtung der Probe eingesetztes Laserlicht wird durch das Objektiv auf die Probe fokussiert. Gleichsam sorgt das Objektiv dafür, dass das von der Probe emittierte Licht aufgesammelt und mithilfe einer weiteren Linse auf die Lochblende fokussiert wird. Die Abbildung der Probenoberfläche ist dabei bestmöglich scharf, wenn beide Fokuspunkte auf der Probe übereinanderliegen. In der Geometrie werden zwei Kegelschnitte als konfokal be-

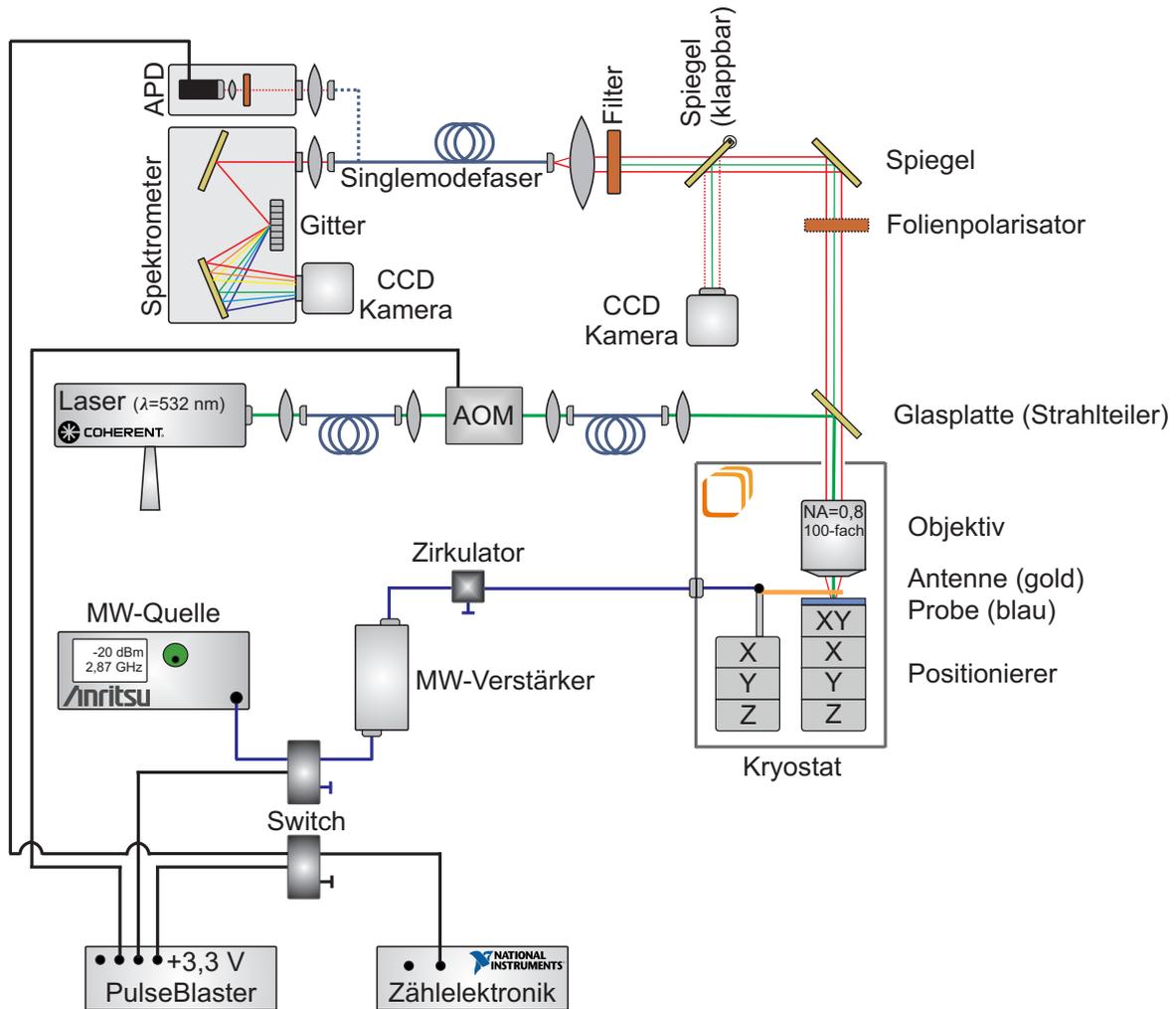


Abbildung 5.1: Schematische und vereinfachte Darstellung des Messaufbaus. Laserlicht durchläuft einen AOM und wird anschließend durch ein Mikroskopobjektiv auf die Probenoberfläche fokussiert. Die Fluoreszenz der Probe (rote Linie) wird durch dasselbe Objektiv aufgesammelt und in eine Detektionsfaser eingekoppelt. Diese Faser kann wahlweise mit einem HBT-Interferometer (nicht eingezeichnet), einem Spektrometer oder auch einer APD verbunden werden. Die Probenoberfläche kann zusätzlich unter Weißlichtbeleuchtung (nicht eingezeichnet) mithilfe einer CCD-Kamera betrachtet werden. Die Probe wie auch die zur Manipulation des NV-Elektronenspins benötigte Mikrowellenantenne können über separate Positionierer verfahren werden. Objektiv und Positioniersystem befinden sich in einem Cage-System arretiert in einem Kryostaten. Die von einer Mikrowellenquelle erzeugten Signale werden verstärkt und anschließend über einen Zirkulator an die Goldantenne weitergeleitet. Zusätzlich sind noch zwei Signalschalter (Switch) eingebaut. Die schwarzen und blauen Linien stellen Koaxialkabel dar. Anmerkung: Es wurde noch ein weiterer Kryostat mit abweichendem internen Aufbau sowie ein weiterer separater optischer Aufbau mit abweichenden Geräten, aber vergleichbarem Funktionsprinzip verwendet (siehe Text).

zeichnet, wenn ihre Brennpunkte übereinstimmen, daher die Bezeichnung *konfokales* Mikroskop. Im Vergleich zu einem herkömmlichen Lichtmikroskop erlaubt ein Konfokalmikroskop die scharfe Abbildung selbst kleinster Objekte, wofür hauptsächlich zwei Ursachen anzugeben sind. Zum einen werden Orte auf der Probe außerhalb des Fokuspunkts des Lasers nicht beleuchtet und tragen daher prinzipiell nicht zur aufgesammelten Fluoreszenz bei. Des Weiteren wird die Auflösung eines gewöhnlichen Lichtmikroskops dadurch vermindert, dass auch Licht, das aus dem Lichtkegel außerhalb der Fokusebene vom Objektiv aufgesammelt wird, zur Abbildung beiträgt, wohingegen bei einem konfokalen Mikroskop derartig vom Objektiv aufgesammeltes Licht nicht auf die Lochblende fokussiert wird und somit auch nicht zur Abbildung beitragen kann. Nur aus dem modellhaft angenommenen Fokuspunkt emittiertes Licht gelangt durch die Lochblende. In Folge dessen weist ein konfokales Mikroskop im Vergleich zu einem herkömmlichen Lichtmikroskop eine bessere Auflösung in lateraler und eine deutlich bessere Auflösung in der vertikalen z -Richtung auf. Diese verbesserte Auflösung wird in den verwendeten Versuchsaufbauten ausgenutzt, um etwa Resonatormoden oder auch NV-Zentren gezielt zu adressieren und deren Emission aufzusammeln. Für eine tiefere Beschreibung des Konfokalmikroskops sowie aller seiner Stärken und Besonderheiten sei auf die Literaturen [123, 229] verwiesen.

Ein herkömmliches Lichtmikroskop weist hingegen den Vorteil auf, dass ein großer Bereich der Probe beleuchtet und auch gleichzeitig abgebildet werden kann. Folglich kann man schnell einen wenn auch nicht optimal orts aufgelösten Überblick über die Probe erhalten. Zu diesem Zweck ist in unseren Aufbauten zusätzlich eine CCD-Kamera eingebaut, die zusammen mit einer Weißlichtquelle und dem Objektiv ein herkömmliches Lichtmikroskop bildet. Wird im Gegensatz dazu eine Abbildung der Probe im konfokalen Mikroskop gemacht, so ist die Auflösung wie angesprochen deutlich besser, allerdings muss jeder Bildpunkt auf der Probe separat angefahren werden. Ein vollständiges Fluoreszenzbild einer Region auf der Probe ergibt sich bei diesem Mikroskoptyp daher erst nach einem mehrere Minuten bis einige Stunden andauernden automatisierten Rasterns über die Probenoberfläche.

Optische Anregung

Wie in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt ist, wurde in der Regel ein nicht-resonanter Laser zur Beleuchtung der Probe sowie zur Anregung der NV-Zentren und Resonatormoden verwendet. Der eingesetzte diodengepumpte Festkörperlaser (*Verdi*, Coherent) erzeugt kontinuierliche Laserstrahlung (*continuous wave*, CW) bei einer Wellenlänge von 532 nm. Das Laserlicht wird in eine für grünes Licht geeignete optische Faser (*SM450*, Thorlabs) eingekoppelt und tritt anschließend in einen AOM (*AOMO 3200-146*, Crystal Technology) ein.

Ein akustisch-optischer Modulator besteht aus einem transparenten Medium (hier: Tellurdioxid), an dessen Enden sich Piezoelemente befinden. Ist der AOM eingeschaltet, so erzeugen die Piezoelemente eine Schallwelle, die im Kristall eine periodische Änderung der Dichte des transparenten Mediums und somit eine periodische Modulation des Brechungsindex hervorruft. An dem derart erzeugten optischen Gitter wird das einfallende Laserlicht in mehrere Beugungsordnungen aufgespalten. Im verwendeten Aufbau wird das Laserlicht aus der ersten Beugungsordnung in

eine Faser eingekoppelt und zum Konfokalmikroskop weitergeleitet. Ist der AOM hingegen ausgeschaltet, so wird das Laserlicht nicht gebeugt und gelangt folglich auch nicht in die Faser. Durch den derartigen Einsatz eines AOM kann trotz Verwendung eines kontinuierlichen Lasers eine Anregung mit Laserpulsen einstellbarer Pulslänge realisiert werden.

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Lebensdauermessungen wurde zur Anregung der NV-Zentren ein gepulster Weißlichtlaser (*SC-Pro*, YSL photonics) verwendet, der Laserpulse der zeitlichen Breite 130 ps bei einer Repetitionsrate von hier 10 MHz erzeugen kann. Die Leistungsdichte des Lasers ist annähernd homogen über einen breiten Wellenlängenbereich beginnend bei 400 nm bis tief hinein in den infraroten Spektralbereich bei 1700 nm verteilt. Aus dem kontinuierlichen Weißlichtspektrum wird durch einen schmalbandigen Filter (*FL532-4*, Thorlabs) grünes Licht mit einer Wellenlänge um 532 nm herausgefiltert und nach Einkopplung in eine Faser ohne Durchgang durch den AOM direkt in das Konfokalmikroskop eingestrahlt.

Für die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Photolumineszenz-Anregungsspektren wurde ein durchstimmbarer, fasergekoppelter Diodenlaser (*DL100*, Toptica Photonics) verwendet, der durch Einstellen des Lasergitters Photonen zwischen 636,4 nm bis hin zu 639,0 nm und somit im Bereich der Wellenlänge der Nullphononenlinie des NV-Zentrums emittieren kann. Das Laserlicht wird ebenfalls ohne Durchgang durch den AOM direkt in das Konfokalmikroskop eingestrahlt.

Fluoreszenzdetektion

Das Anregungslicht wird im Konfokalmikroskop durch ein Objektiv (*LMPlanFL N 100x*, Olympus) mit 100-facher Vergrößerung bei einer numerischen Apertur von 0,8 auf die Probe fokussiert. Das durch dasselbe Objektiv aufgesammelte Fluoreszenzlicht gelangt durch eine als Strahlteiler genutzte keilförmige Glasplatte (*HBSW26*, Thorlabs) und wird anschließend durch einen optischen Langpassfilter gefiltert. Dieser lässt das Fluoreszenzlicht nahezu ungehindert passieren, wohingegen an der Probe reflektiertes Licht des Anregungslasers um mehrere Größenordnungen unterdrückt wird. Das nach erfolgter spektraler Filterung verbliebene Fluoreszenzlicht wird anschließend in eine geeignete optische Faser (*SM600*, Thorlabs) eingekoppelt, deren Kerndurchmesser mit 4,3 μm gleichzeitig die Lochblende des Konfokalmikroskops darstellt.

Mithilfe eines Gitterspektrometers (*iHR 550*, Horiba Jobin Yvon) kann die aufgesammelte Fluoreszenz spektral analysiert werden. Das Fluoreszenzlicht wird dazu auf den Spektrometerspalt einstellbarer Breite fokussiert. Als Detektor wird eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte CCD-Kamera (*Symphony BIDD*, Horiba Jobin Yvon) mit einer Detektorfläche von 1024 Pixel \times 256 Pixel (1 Pixel entspricht dabei 26 $\mu\text{m} \times$ 26 μm) eingesetzt, die laut Hersteller eine Quanteneffizienz von bis zu 90 % aufweist. Die in dieser Arbeit gezeigten Spektren wurden je nach gewünschter Auflösung entweder mit einem Gitter mit 600 Linien/mm oder mit 1800 Linien/mm aufgenommen. Das 600er-Gitter wird dabei mit einer maximalen spektralen Auflösung von 0,22 nm und das 1800er-Gitter mit einer spektralen Auflösung von 0,06 nm spezifiziert, jeweils für Licht der Wellenlänge 500 nm angegeben. Zur spektralen Polarisationsanalyse der Resonatormoden kann zusätzlich ein Folienpolarisator in den Nachweisstrahlengang eingebracht werden.

Alternativ kann das Fluoreszenzlicht durch Umstecken der Detektionsfaser in eine Box mit einem

Einzelphotonendetektor eingekoppelt werden. Als Einzelphotonendetektor wird eine Silizium-Photodiode mit lawinenartiger Verstärkung (*avalanche photo diode*, APD) eingesetzt. Trifft ein Photon auf die APD (*SPCM-AQR-14*, Excelitas), so erzeugt dieses intern im aktiven Medium einen Ladungsträger, der wiederum einen lawinenartigen Puls von Elektronen auslöst. Dieses Funktionsprinzip ist dem des Geiger-Müller-Zählrohrs ähnlich. Bei der verwendeten APD vergeht im Schnitt eine Zeitspanne von 22 ns, bis das Gerät wieder einsatzbereit ist und das nächste Photon detektiert werden kann. Die zeitliche Auflösung der Photonendetektion beträgt dabei etwa 350 ps, bedingt durch die Zeitunbestimmtheit bei der Umwandlung eines auf die APD auftreffenden Photons in den angesprochenen Puls von Elektronen. Die verwendete APD weist eine Quanteneffizienz von 65 % für Wellenlängen zwischen 600 nm und 750 nm bei einer spezifizierten Dunkelzählrate von unter 100 Ereignissen/s auf.

Soll entschieden werden, ob die detektierten Photonen von einem einzelnen Emitter oder eher einem Ensemble von Emittlern stammen, so wird statt einer einzelnen APD ein Hanbury Brown und Twiss (HBT) Interferometer eingesetzt [230]. Die Detektionsfaser wird dazu an eine Box angeschlossen, in der die Photonen zunächst auf einen nicht-polarisierenden 50:50-Strahlteilerwürfel treffen. In beiden Armen des Interferometers wird das Licht spektral gefiltert und auf Einzelphotonendetektoren fokussiert. Wird die genaue Ankunftszeit der Photonen auf den Detektoren jeweils registriert, so kann daraus die Intensitäts-Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ berechnet werden. Diese Funktion ist ein geeignetes Maß für die Wahrscheinlichkeit, zwei Photonen innerhalb eines Zeitintervalls τ zu detektieren [194]. Da ein einzelner Quantenemitter immer nur ein Photon zur gleichen Zeit emittieren kann, sollte diese Funktion für eine Einzelphotonenquelle und ein Zeitintervall gegen $\tau = 0$ idealerweise den Grenzwert Null annehmen.

Die von den Einzelphotonendetektoren erzeugten Elektronenpulse werden im Versuchsaufbau mithilfe einer zeitaufgelösten Zähl elektronik (*time-correlated single photon counting*, TCSPC) analysiert. Die dazu verwendete Elektronik (*NI Lab-PC-1200*, National Instruments) ist in einem herkömmlichen Computer eingebaut und wird auch als DAQ-Karte (*data acquisition*) bezeichnet. Lediglich bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Lebensdauermessungen und $g^{(2)}$ -Messungen wurde eine davon abweichende TCSPC-Elektronik (*PicoHarp 300*, PicoQuant) verwendet. Dies liegt zum einen darin begründet, dass die *PicoHarp* direkt mit dem Weißlichtlaser verbunden werden und somit ihre Auswertefenster direkt auf die Zeitpunkte der Laserpulse abstimmen kann. Des Weiteren ist die zeitliche Auflösung der verwendeten DAQ-Karte mehrere Größenordnungen schlechter als die der *PicoHarp* mit einer Zeitauflösung der Elektronik von 4 ps. Daher sind aussagekräftige zeitaufgelöste Messungen und somit insbesondere $g^{(2)}$ -Messungen im verwendeten Aufbau nur mit der *PicoHarp* sinnvoll.

Die zeitliche Auflösung der Photonendetektion ist für einen realen Aufbau generell ungleich Null, unter anderem aufgrund der angesprochenen zeitlichen Unbestimmtheit bei der Registrierung eines Photons durch eine APD. Im Allgemeinen sollte diese zeitliche Unbestimmtheit etwa bei der Auswertung von Lebensdauermessungen oder auch $g^{(2)}$ -Messungen berücksichtigt werden. Sowohl die $g^{(2)}$ -Funktion als auch die Exponentialfunktion, die den zeitlichen Abfall der Besetzung des angeregten Zustands bei einer Lebensdauermessung beschreibt, können dazu mit der sogenannten zeitlichen Antwortfunktion des Aufbaus (*instrument response function*, IRF) gefaltet

werden, siehe dazu etwa [89]. Die Lebensdauer eines NV-Zentrums ist jedoch mit 12 ns typischerweise deutlich größer als die zeitliche Unbestimmtheit des Aufbaus, die durch die APD mit etwa 350 ps dominiert ist. In Folge dessen liegt für ein NV-Zentrum der Fehler durch Vernachlässigung der IRF beispielsweise bei der Bestimmung der Lebensdauer bei unter 2 % [89]. Daher kann der Einfluss einer beschränkten zeitlichen Auflösung der Photonendetektion bei der Auswertung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen generell vernachlässigt werden.

Kryostaten

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zur Durchführung der erfolgten Messungen bei tiefen Temperaturen zwei verschiedene Kryostaten genutzt, ein vibrationsarmes Gerät mit einem geschlossenem Heliumkreislauf und Heliumaustauschgas (*Attodry2100*, Attocube) sowie ein Gerät mit Flüssigheliumdurchfluss (*ST-500LN*, Janis Research). Der Flusskryostat besteht aus einer evakuierbaren Probenkammer, in der sich ein Kühlfinger aus Kupfer befindet. Der Kühlfinger kann mithilfe eines einstellbaren Durchflusses an flüssigem Helium auf Temperaturen bis zu 4 K abgekühlt werden. Die Stabilisierung der Temperatur erfolgt über einen elektrischen Heizer, dessen Heizleistung über eine PID-Regelung gesteuert wird. Der Kühlfinger mit darauf befestigter Probe ist an einem xy -Verschiebetisch (*M-UMR8.25*, Newport) mit zwei linearen Schrittmotoren (*LTA-HL*, Newport) befestigt, die das Abrastern der Probe im konfokalen Aufbau in lateraler Richtung ermöglichen. Das Objektiv ist zur Einstellung des Laserfokus auf einem weiteren Verschiebetisch mit baugleichem linearem Schrittmotor positioniert.

Im verwendeten Trockenkryostaten ist ein vakuumtauglicher Metalleinsatz eingebaut, der mit Heliumgas befüllt und anschließend auf Temperaturen bis zu 1,6 K abgekühlt werden kann. In diesen Metalleinsatz ist ein nicht-magnetisierbares Cage-System zur Befestigung des Objektivs sowie der Positionierer eingelassen. Die turmähnliche Anordnung der Positioniereinheiten weist drei separate Piezoversteller (*ANPx51*, *ANPz51*, Attocube) für eine gröbere Verschiebung der Probe in x , y bzw. z -Richtung sowie ein weiterer Piezoscanner (*ANSxy50*, Attocube) für feinere laterale Abrasterungen der Probenoberfläche auf. Die größeren Verschiebemodule erlauben einen Probenbereich von $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ abzurastern, die feineren einen Bereich von $30 \text{ }\mu\text{m} \times 30 \text{ }\mu\text{m}$ bei Raumtemperatur und $15 \text{ }\mu\text{m} \times 15 \text{ }\mu\text{m}$ bei tiefen Temperaturen. Die Temperatur selbst wird auch bei diesem Kryostaten über Heizmodule mit einer PID-Regelung gesteuert, die verbleibenden Temperaturschwankungen liegen selbst über mehrere Tage bei unter 10 mK. In das Cage-System ist darüber hinaus ein zweiter Positionierturm mit ebenfalls drei separaten Piezomodulen (*ANPx51*, *ANPz51*, Attocube) eingebaut. An dessen Spitze ist die aus Golddraht geformte Mikrowellenantenne befestigt, die mithilfe des zweiten Positioniersystems relativ zur Probe verfahren werden kann. Im Bereich des Probenraums kann ein Magnetfeld mit Flussdichten zwischen 0 T bis 9 T sowohl bei tiefen Temperaturen als auch bei Raumtemperatur angelegt werden. Das Magnetfeld ist dabei in z -Richtung und somit in Richtung des Metalleinsatzes ausgerichtet.

Da der Trockenkryostat von Attocube zu Beginn dieser Forschungsarbeit noch nicht verfügbar war, wurden die in Abschnitt 8.1 dargelegten Messungen im Flusskryostaten durchgeführt. Ferner erfolgten die in Kapitel 6 beschriebenen Messungen in einem unabhängigen Aufbau bei

Raumtemperatur, auf den im folgenden Abschnitt als Charakterisierungsaufbau bezeichnet eingegangen wird. Die Weiteren in dieser Dissertation dargelegten Experimente wurden alle im beschriebenen Trockenkryostaten durchgeführt. Die peripheren optischen Messaufbauten waren für beide Kryostaten identisch und entsprechen den bisherigen Ausführungen in diesem Kapitel.

Charakterisierungsaufbau

Die als Charakterisierungsaufbau bezeichnete Versuchsanordnung ist auf Raumtemperaturmessungen beschränkt. Da die Probe hier jedoch horizontal auf den Probenhalter gelegt werden kann und aufwändige Klemm- und Klebeverfahren somit entfallen, ist der Aufbau insbesondere für die optische Charakterisierung von Farbzentren oder Resonatormoden in photonischen Kristallstrukturen bestens geeignet. Alle in Kapitel 6 dargelegten Messungen wurden mithilfe dieses Versuchsaufbaus durchgeführt.

In dieser Versuchsanordnung sind der gleiche Strahlteiler, das gleiche Objektiv sowie auch die gleiche Faser als Lochblende des Konfokalmikroskops eingebaut. Als Anregungslaser wird ein anderes Fabrikat eines diodengepumpten Festkörperlaser (*Nano 250-532-100*, Linos) mit einer Wellenlänge von ebenfalls 532 nm eingesetzt. Das Mikroskopobjektiv und der Probenhalter können mithilfe von Schrittmotoren (*M-VP-25XL*, Newport) mit einer minimalen Schrittweite von 5 nm verfahren werden. Mithilfe eines Gitterspektrometers (*Acton Research SP2500*, Princeton Instruments) kann auch hier die Fluoreszenz spektral analysiert werden. Dazu wird das Licht durch eine Linse der Brennweite 50 mm auf den Spektrometerspalt der Breite 100 μm fokussiert. Als Detektor wird eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte CCD-Kamera (*Spec-10*, Princeton Instruments) verwendet. Die Kamera weist eine Detektorfläche von 1340 Pixel \times 100 Pixel (1 Pixel entspricht 20 μm \times 20 μm) auf und besitzt laut Hersteller eine maximale Quanteneffizienz von 95 %. Alle mit diesem Spektrometer gemessenen Spektren wurden mit einem Gitter von 600 Linien/mm aufgenommen. Zur Detektion der Fluoreszenz sind abweichende Einzelphotonendetektoren (*τ -SPAD 100*, PicoQuant) eingebaut. Diese weisen eine spezifizierete Quanteneffizienz von 60 % im Wellenlängenbereich von 600 nm bis 800 nm, eine Dunkelzählrate von 100 Ereignisse/s und eine Totzeit von 70 ns auf. Ferner wird eine abweichende TCSPC-Elektronik (*Time Tag Module*, Dotfast Consulting) verwendet.

5.2 Mikrowellenaufbau

Zur Demonstration und Untersuchung der Spinmanipulation von NV-Zentren wird neben dem optischen Aufbau zusätzlich ein Mikrowellenaufbau benötigt. Die eingesetzte Mikrowellenquelle (*MG3692C*, Anritsu) kann Mikrowellensignale im Frequenzbereich von 2 GHz bis 20 GHz erzeugen und somit insbesondere Mikrowellenpulse im Bereich der Nullfeldaufspaltung der Grundzustandsniveaus des NV-Zentrums von $D_g = 2,87$ GHz. Das Mikrowellenfeld wird von der Quelle ausgehend in einem verlustarmen Koaxialkabel (*141-50SM+*, MiniCircuits) zunächst zu einem Verstärker (*ZHL-16W-43-S+*, MiniCircuits) geführt, der das Mikrowellensignal mit einer Leistungssteigerung von +45 dB verstärkt. Anschließend gelangen die elektromagnetischen Felder

über einen Zirkulator (*SFC2040A*, Fairview Microwave) zum Trockenkryostaten und werden dort an ein internes, nachträglich eingebautes Koaxialkabel übergeben.

Dieses Koaxialkabel ist entlang des Käfigsystems bis hinunter in den Probenraum verlegt und wird schließlich mithilfe eines 10 μm dicken und zu einer Schlinge gebogenen Golddrahts kurzgeschlossen. Diese Schlinge ist wie bereits dargelegt am oberen Ende des zweiten Positionierturms befestigt und fungiert als verfahrbare Mikrowellenantenne. Das Signal wird erst am unteren Ende des Käfigsystems vom Koaxialkabel in die abstrahlende Nahfeldantenne eingespeist um den Wärmeeintrag im Kryostaten so gering wie möglich zu halten. Aufgrund des Kurzschlusses muss zusätzlich ein Zirkulator im Mikrowellenkreis zwischen Verstärker und Antenne eingebaut sein. Unerwünschte rückwärtsgerichtete Signale können den Zirkulator nur an einem dritten, mit einem Endwiderstand (*Anne-50+*, MiniCircuits) versehenen Ausgang verlassen und somit weder Verstärker noch Mikrowellenquelle erreichen oder gar beschädigen.

Die Mikrowellenantenne hat eine Länge von etwa 3 cm bei einer Breite von etwa 0,5 cm und ragt über die Probe in den 1,6 mm großen Arbeitsabstand des Objektivs hinein. Beim Verfahren der Antenne ist somit stets darauf zu achten, dass die Antenne weder das metallische Objektiv berührt (Signalkurzschluss) noch auf der Probe aufsetzt und diese so unter Umständen beschädigt. Im realen Experiment bleibt bei gut gebogener Antenne ein Fahrweg in z -Richtung zwischen Probenoberfläche und erstem Kontakt mit dem Objektiv von etwa 300 μm .

5.3 Realisierung von Pulssequenzen

Für die im Rahmen dieser Forschungsarbeit durchgeführten Experimente werden Pulssequenzen benötigt, wie etwa für die Demonstration von Rabi-Oszillationen zwischen den Grundzustandsniveaus von NV-Zentren. In derartigen Sequenzen erfolgen sowohl die Laseranregung als auch die Mikrowellenanregung der Farbzentren in festgelegten und aufeinander abgestimmten Zeitfenstern, ebenso wie auch die Detektion der erzielten Fluoreszenz. Um derartige aufeinander abgestimmte Pulssequenzen realisieren zu können, werden verschiedene schnell schaltende Bauteile eingesetzt, die von einer speziellen Elektronik automatisiert angesteuert werden.

Eines dieser besonderen Bauteile ist der zwischen Laser und Konfokalmikroskop eingebaute AOM. Das CW-Laserlicht wird im transparenten Medium des AOM wie bereits dargelegt in mehrere Beugungsordnungen aufgespalten und lediglich die erste Beugungsordnung in eine geeignete Faser eingekoppelt. Die Laseremission kann durch Ein- und Ausschalten des AOM in Pulse zerlegt werden. Das Schalten sorgt dabei technisch bedingt zwar für das Auftreten von abgeflachten Flanken, die Steigzeiten und Sinkzeiten der Laserleistung beim Schalten sind jedoch mit etwa 10 ns deutlich geringer als die in den Versuchen benötigten Laserpulslängen in der Größenordnung von wenigen Mikrosekunden. Das Einschalten des AOM wird über eine sogenannte PulseBlaster-Karte (*PulseBlasterESR-PRO*, SpinCore Technologies) gesteuert, die in einen herkömmlichen Computer eingebaut wird und sehr schnelle TTL-Pulse (*Transistor-Transistor-Logik*, TTL) ausgeben kann. Die hohe Geschwindigkeit der PulseBlaster-Karte ist dabei auf einen internen Referenzoszillator mit einer Eigenfrequenz von 500 MHz zurückzuführen, die Karte kann folglich

Spannungspulse mit einer minimalen Länge von bis zu 2 ns ausgeben.

Die verwendete PulseBlaster-Karte kann mehrere Geräte parallel mit dem gleichen Referenzoszillator steuern. Im vorliegenden Versuchsaufbau steuern weitere TTL-Pulse zusätzlich zwei Signalschalter (*ZASWA-2-50DR+*, MiniCircuits). Ein solcher Switch hat einen Eingang für elektrische oder auch Mikrowellensignale, zwei potenzialabhängige Signalausgänge und einen Eingang für TTL-Pulse. Bei einer am TTL-Eingang angelegten Spannung zwischen 2 V und 5 V wird das Signal zum Hochniveau-Ausgang, sonst zum Niedrigniveau-Ausgang geleitet. Die Pulse der PulseBlaster-Karte determinieren folglich, welchen Ausgang das eingespeiste Signal nimmt. Der Niedrigniveau-Ausgang wird mit einem Endwiderstand terminiert. Somit erfolgt ein erwünschter Signaldurchgang stets über den Hochniveau-Ausgang. Im Versuchsaufbau wird einer der beiden Signalschalter zur Steuerung der Mikrowellenanregung genutzt. Während die Mikrowellenquelle im CW-Betrieb betrieben wird, fungiert der Switch vor dem Verstärker in Verbindung mit den TTL-Pulsen der PulseBlaster-Karte quasi als Schalter für die Mikrowellenanregung. Der zweite Switch wird eingesetzt, um die elektrischen Signale von der APD zur Zählelektronik zu schalten. Somit kann die Zählelektronik im Dauerbetrieb eingeschaltet bleiben und dennoch das Auslesezeitfenster der auf der APD registrierten Photonen beliebig gewählt werden.

Die eingesetzten Pulssequenzen bestehend aus Laserpulsen, Mikrowellenpulsen und daran gekoppelten Zeitfenstern für die Fluoreszenzdetektion weisen Zeitkonstanten bis hinunter zu 20 ns mit Pulsabständen von weniger als 100 ns auf. In dieser zeitlichen Größenordnung werden sowohl die Signalgeschwindigkeiten der verwendeten Kabel zwischen PulseBlaster-Karte und den Geräten als auch die Schaltzeiten der Geräte selbst relevant. Als Signalleiter werden Koaxialkabel sowohl für die TTL-Pulse als auch für die Mikrowellenpulse verwendet. Diese bringen eine Verzögerung von 5 ns pro Meter mit sich. Aber auch die Lichtwege sind mit einer Verzögerung von etwa 3,33 ns pro Meter zu beachten. Die größte zeitliche Verzögerung verursacht jedoch das Aufbauen des optischen Gitters innerhalb des AOM, da hierzu unter anderem zunächst die Schallwelle erzeugt und diese sich darüber hinaus durch das transparente Medium ausbreiten muss, ehe Laserstrahlung in die erste Beugungsordnung gelangen kann.

Die Signalverzögerung der optischen Anregung kann etwa bestimmt werden, indem ein TTL-Puls zum Zeitpunkt $t_0 = 0$ s von der PulseBlaster-Karte in Richtung AOM gestartet wird. Parallel dazu wird ein TTL-Puls zum Switch zwischen APD und Zählelektronik entsandt, der diesen Signalkanal für eine Zeitspanne von beispielsweise $\Delta t = 10$ ns öffnet. Das Auslesezeitfenster wird in aufeinanderfolgenden Pulssequenzen schrittweise zeitlich verschoben und die Zählrate jeweils detektiert. Für den dargelegten Versuchsaufbau beträgt die ermittelte Zeitverzögerung der optischen Anregung insgesamt 250 ns. Diese beinhaltet Signallaufzeiten in den Koaxialkabeln, optische Laufwege sowie technisch bedingte Zeitverzögerungen in AOM und APD. Die Zeitverzögerung der Mikrowellenanregung kann mithilfe der entsprechenden Kabellängen bestimmt werden, da die Signalschalter und der Mikrowellenverstärker selbst keine relevante Zeitverzögerung verursachen. Die diskutierten Signalverzögerungen sind bei der Implementierung der Pulssequenzen zu berücksichtigen, um sicherzustellen, dass die programmierte Pulssequenz auch tatsächlich so wie intendiert am Ort der Probe vorliegt.

6 Nanofabrikation photonischer Strukturen

Die Charakterisierungsmethoden in Abschnitt 6.2 sowie die FIB-Strukturierungen in Abschnitt 6.3 wurden zusammen mit Christoph Pauly am Lehrstuhl Prof. Dr. Frank Mücklich (Universität des Saarlandes) durchgeführt. Die Ergebnisse des Kapitels wurden bereits teilweise in [231] veröffentlicht.

Einkristalliner Diamant ist ein vielversprechendes Ausgangsmaterial für verschiedenliche Anwendungen in der Quanteninformationstechnologie, unter anderem aufgrund der darin enthaltenen oder erzeugbaren NV-Zentren mit den angesprochenen herausragenden Eigenschaften wie beispielsweise der Langlebigkeit des Spinzustands sowie der Möglichkeit, den Elektronenspin initialisieren, gezielt manipulieren sowie rein optisch auszulesen zu können. Darüber hinaus weist Diamant eine außergewöhnliche Härte sowie eine sehr gute chemische Beständigkeit auf. Genau diese physikalischen Eigenschaften stellen jedoch eine Herausforderung bei der gezielten Diamantbearbeitung etwa zur Herstellung photonischer Nanostrukturen dar.

In diesem Kapitel wird der Herstellungsprozess von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in Diamant dargelegt. Dieser Prozess gliedert sich in drei Schritte. Zunächst wird aus 30 μm dickem einkristallinem Rohmaterial eine wenige hundert Nanometer dicke freistehende Diamantmembran hergestellt. Im Anschluss daran wird der dünne Diamantfilm mit verschiedenen in diesem Kapitel näher beschriebenen Methoden charakterisiert, um geeignete Stellen für die Fabrikation der Resonatoren ausfindig zu machen. Dazu werden vier verschiedene Techniken eingesetzt, die sich gegenseitig ergänzen und die Detektion von Defektstellen im Diamant oder auch von lokalen Abweichungen in der Schichtdicke mit hoher Genauigkeit ermöglichen. Dies erlaubt im dritten Schritt die reproduzierbare Herstellung der photonischen Kristallstrukturen in der Diamantmembran durch Prozessierung mit einem fokussierten Ionenstrahl (*focused ion beam*, FIB). Darüber hinaus werden in diesem Kapitel Optimierungen der FIB-Strukturierung vorgestellt. Mithilfe der entwickelten Verbesserungen können Fabrikationsabweichungen bei den hergestellten photonischen Kristallstrukturen deutlich reduziert werden. Im letzten Abschnitt des Kapitels wird die optische Charakterisierung der Resonatoren dargelegt. Die erzielten Gütefaktoren und spektralen Positionen der Resonatormoden werden hierbei insbesondere auch mit den theoretischen Vorhersagen aus Simulationen abgeglichen.

6.1 Herstellung dünner freistehender Diamantmembranen

In den vergangenen Jahren wurden zahlreiche Techniken entwickelt, um wenige hundert Nanometer dicke freistehende Membranen aus einkristallinem Diamant herzustellen. Ein möglicher

Herstellungsprozess basiert auf einem durch Ionen unterstützten Lift-Off Prozess. Dabei werden zunächst hochenergetische He^+ -Ionen in den Diamanten in einer wohldefinierten Tiefe implantiert [232–236]. Durch Ausheizen bei hohen Temperaturen in einem Vakuumofen wird die räumlich scharf begrenzte und mit Heliumionen implantierte Diamantschicht in sp^2 -hybridisierten Kohlenstoff, vornehmlich Graphit, umgewandelt. Der sp^2 -hybridisierte Kohlenstoff lässt sich in geeigneten Säuren auflösen und kann daher in einem Lift-Off Prozess rückstandsfrei entfernt werden. Die resultierende freistehende Diamantmembran wird anschließend mithilfe eines Trockenätzprozesses, dem reaktiven Ionenätzen (*reactive ion etching*, RIE), auf die gewünschte Schichtdicke ausgedünnt. Aufgrund der hohen Absorptionsverluste durch Implantationsschäden konnte bis heute jedoch kein Resonator in derartig gefertigten Diamantmembranen hergestellt werden, der in anschließenden Charakterisierungen Hinweise auf Moden erkennen ließ.

Auf die infolge der Heliumimplantation geschädigte Schicht kann aber eine weitere dünne Diamantschicht homoepitaktisch aufgewachsen werden, die frei von Schäden und somit für die weitere Prozessierung uneingeschränkt geeignet ist. In der Literatur sind zwei verschiedene Ansätze beschrieben, wie mit dem resultierenden Schichtsystem nach Lift-Off und homoepitaktischem Überwachsen weiter verfahren werden kann, um die Handhabbarkeit etwa bei der anschließenden Strukturierung zu gewährleisten. Die Probe kann zum einen auf ein Substrat aus Polymethylmethacrylat (PMMA) transferiert werden, das wiederum auf einen Siliziumchip aufgebracht wurde. Die freistehende Diamantmembran wird im Anschluss erzeugt, indem die PMMA-Schicht nach Herstellung der photonischen Strukturen selektiv entfernt wird [234]. Alternativ kann die Probe auch zuerst gedreht und dann auf einem vorstrukturierten Substrat befestigt werden [235, 236]. In beiden Fällen wird die endgültige Schichtdicke durch Entfernen des implantationsgeschädigten Diamanten in einem RIE-Prozess erreicht, sodass lediglich die zuvor aufgewachsene, intakte Diamantschicht als dünne freistehende Diamantmembran hoher Qualität verbleibt.

Als weitere Möglichkeit können dünne Diamantmembranen auch basierend auf einem heteroepitaktischen Wachstum von Diamant auf Iridium als Teil eines Systems von Opfersubstraten realisiert werden. Das Substrat wird teilweise entfernt und der Diamant anschließend von der Rückseite ausgehend per RIE-Prozessierung ausgedünnt [88, 237].

In einem dritten Ansatz werden polierte Diamantmembranen auf ein stabiles Substrat etwa aus Silizium aufgebracht und mittels einer Klebeschicht und adhäsiver Anziehung befestigt. Anschließend erfolgt eine Ausdünnung auf die gewünschte Schichtdicke per RIE. Um freistehende Diamantmembranen zu erhalten, wird das Siliziumsubstrat unter der Diamantschicht partiell durch isotropes und selektiv auf Silizium abgestimmtes reaktives Ionenätzen entfernt, nachdem die photonischen Strukturen darin hergestellt wurden [82, 85]. Dieser Ansatz hat den Vorteil, dass etwa im Gegensatz zu Diamantfilmen aus heteroepitaktischem Wachstum hierbei kommerziell erhältlicher Diamant mit hoher Kristallqualität genutzt werden kann. Alternativ kann unter Verwendung des gleichen hochreinen Ausgangsmaterials auch eine freistehende Diamantmembran in einem Volldiamantsystem hergestellt werden. Dazu wird der Diamant während des RIE-Prozesses etwa durch eine strukturierte Platte aus Quarzglas partiell maskiert [238]. Die resultierende Diamantmembran ist von Luft umgeben und an den Kanten dennoch mit dem umgebenden Diamantmaterial fest verbunden.

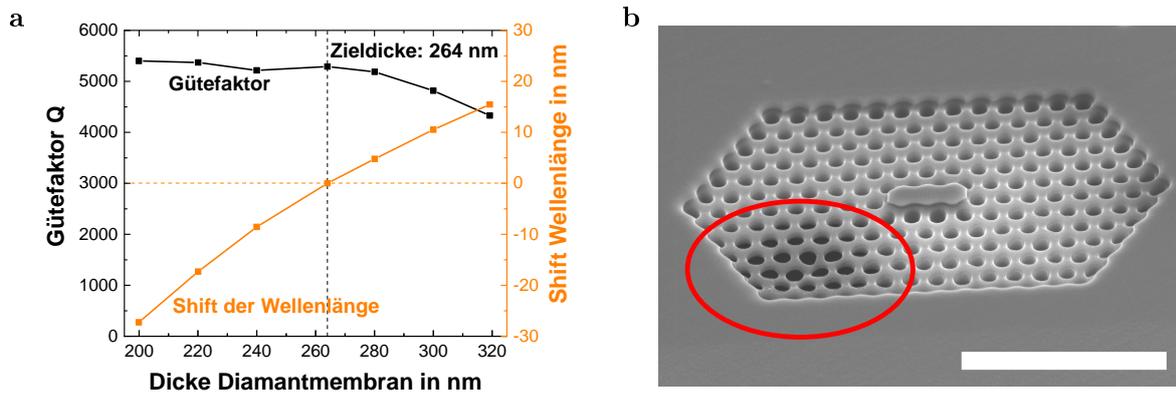


Abbildung 6.1: Untersuchung fabrikationsbedingter Abweichungen. (a) Simulationen von Gütefaktor (schwarz) und Verschiebung der Wellenlänge (orange) der Fundamentalmode eines M3-Resonators als Funktion der Dicke des Diamantfilms (Zielschichtdicke: 264 nm). (b) REM-Bild einer hergestellten photonischen Kristallstruktur. Ein zuvor bereits vorhandener Defekt in der Diamantmembran führt hier zu lokal vergrößerten Lochradien und einer dünneren Diamantschicht (roter Kreis). Zusätzlich sinkt die photonische Kristallstruktur lokal ein. Die eingezeichnete Maßstabsleiste entspricht einer Länge von 2 μm .

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in dünnen freistehenden Membranen aus einkristallinem hochreinem Diamant hoher Qualität hergestellt. Hierzu wurden zwei verschiedene Probensysteme realisiert. Die hergestellten Diamantmembranen sind entweder auf ein strukturiertes Substrat aus Silizium aufgebracht oder in ein Volldiamantsystem integriert.

Um am Ende des dreistufigen Fabrikationsprozesses Resonatoren mit Moden zu erhalten, die einen hohen Gütefaktor aufweisen und gleichzeitig spektral auf die Nullphononenlinie eines NV-Zentrums abgestimmt sind, ist es erforderlich, fabrikationsbedingte Abweichungen in den hergestellten Strukturen so gering wie möglich zu halten. Für die Herstellung der dünnen Membranen bedeutet dies, dass insbesondere die Dicke der Diamantschicht exakt mit der angestrebten Zielschichtdicke übereinstimmen und ferner am Ort der Nanostrukturen kein Defekt vorliegen sollte. Aufgrund von bereits im Rohmaterial vorhandenen Polierkeilen oder auch lokalen Unterschieden in der Ätzrate während der RIE-Prozessierung kann jedoch eine gewisse Variation der Schichtdicke über die dünnen Diamantmembranen hinweg nicht vermieden werden.

Um einen Überblick über die Auswirkungen derartiger Fabrikationsabweichungen auf die Resonatormoden zu erhalten, wurden Simulationen in Meep durchgeführt. Wird beispielsweise ein M3-Resonator an einer Stelle auf der Membran hergestellt, die 10 % dünner ist als angestrebt, so ist die Wellenlänge der Fundamentalmode um 9 nm verschoben (Abbildung 6.1a). Da die Nullphononenlinie eines NV-Zentrums eine Halbwertsbreite von weniger als einem Nanometer aufweist und auch die in Kapitel 8 beschriebenen Techniken zur nachträglichen Anpassung der spektralen Position der Mode begrenzt sind, wird eine Kopplung so erschwert. Des Weiteren sorgen eine variierende Schichtdicke wie auch lokale Defekte (Abbildung 6.1b) in der ausgedünnten Diamantmembran für eine Verringerung der Gütefaktoren der Resonatormoden.

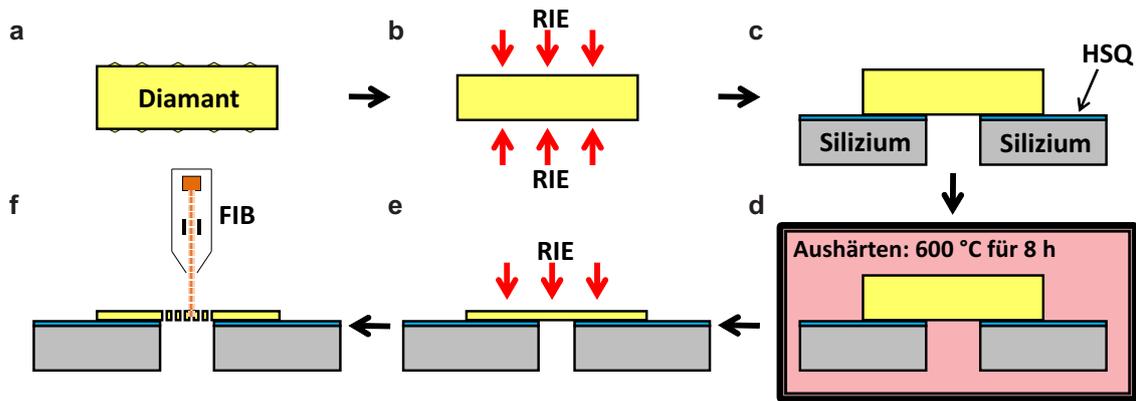


Abbildung 6.2: Schematische Darstellung der Herstellung von zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in einer dünnen freistehenden Diamantmembran. (a) Das Ausgangsmaterial ist ein $30\ \mu\text{m}$ dicker CVD-gewachsener Diamantfilm. (b) Mithilfe eines RIE-Prozesses werden von beiden Seiten der Probe die obersten $5\ \mu\text{m}$ und somit die durch Polierschäden in ihrer Qualität geminderten Schichten entfernt. Das Ergebnis ist eine $20\ \mu\text{m}$ dicke Membran hoher Qualität. (c) Eine HSQ-Schicht (Dicke $50\ \text{nm}$) wird mithilfe einer Lackschleuder auf ein Siliziumsubstrat mit $150\ \mu\text{m} \times 150\ \mu\text{m}$ großen Fenstern aufgebracht. Der Diamant wird anschließend auf dem Substrat ein solches Fenster überdeckend positioniert. (d) Die Probe wird im Vakuum bei $600\ ^\circ\text{C}$ für $8\ \text{h}$ ausgehärtet. Dies führt zu einer stabilen und dichten HSQ-Klebeschicht. (e) Die Membran wird mithilfe eines RIE-Prozesses bis auf die angestrebte endgültige Schichtdicke ausgedünnt und (f) zweidimensionale photonische Kristallstrukturen per FIB-Strukturierung darin hergestellt.

6.1.1 Herstellung von Diamantmembranen auf einem Siliziumsubstrat

In Abbildung 6.2 ist der Herstellungsprozess skizziert. Als Ausgangsmaterial werden $30\ \mu\text{m}$ dicke, in einem CVD-Prozess gewachsene, einkristalline Diamantmembranen verwendet (*electronic grade* Qualität, ElementSix). Der Diamant ist mit einem Stickstoffgehalt von unter $5\ \text{ppb}$ und einer Borkonzentration von unter $1\ \text{ppb}$ spezifiziert und somit als hochrein einzustufen. Die Diamantfilme wurden seitens des Herstellers auf beiden Seiten derart poliert, dass die (001)-Ebene des Diamantgitters die Oberfläche bildet. Die verbliebene RMS Rauigkeit ist auf einer Messfläche von $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ mit unter $2\ \text{nm}$ spezifiziert. Die Diamantfilme werden zunächst in Flusssäure gereinigt, um Polierrückstände in Form von Metallpartikeln zu entfernen. Zusätzlich werden beidseitig die obersten $5\ \mu\text{m}$ der Probenoberfläche entfernt, da deren Diamantqualität aufgrund des Polierprozesses in der Regel vermindert ist.

Das Entfernen der oberflächennahen Diamantschichten erfolgt in einem RIE-Prozess. Dazu wird ein Gerät am *Nano Structuring Center* an der Technischen Universität in Kaiserslautern genutzt (*MicroSys 350*, Roth&Rau). Der entwickelte RIE-Prozess basiert auf einem Argon-Sauerstoff-Plasma. Da in der RIE ein Siliziumwafer als Unterlage verwendet wird, muss während des Ätzens Schwefelhexafluorid zugefügt werden, um die Wiederanlagerung von Siliziumpartikeln, die im Plasma ständig von der Siliziumunterlage abgeätzt werden, auf der Diamantmembran zu verhindern. Eine derartige Anlagerung hätte Ätzdefekte zur Folge, da angelagerte Siliziumteilchen

die Probe lokal maskieren. Das zugesetzte Schwefelhexafluorid fungiert somit quasi als Reiniger während des Ätzprozesses. Zusätzlich verhindert die Zugabe von Schwefelhexafluorid eine grasartige Oberflächenstruktur der geätzten Diamantbereiche und sorgt stattdessen für eine glatte Diamantoberfläche [239]. Der konkrete eingesetzte Gasmix setzt sich aus 15 sccm Sauerstoff (O_2), 10 sccm Argon (Ar) und 5 sccm Schwefelhexafluorid (SF_6) bei einem Kammerdruck von 1 Pa zusammen. Die Gasflüsse sind dabei in standardisierten kubischen Zentimetern pro Minute (sccm) angegeben. Die Mikrowellenleistung wird mit 800 W gewählt und ein Hochfrequenzgenerator mit einer Leistung von 100 W hinzugeschaltet.

Um die Handhabbarkeit der auf wenige hundert Nanometer ausgedünnten Diamantmembranen später gewährleisten zu können, werden die Diamantfilme der verbliebenen Dicke von 20 μm auf ein poliertes, 500 μm dickes Substrat aus Silizium geklebt. In das Substrat wurden zuvor bereits Fenster der Größe 150 $\mu m \times 150 \mu m$ geätzt und Substrat sowie Diamant in einer Mischung aus Schwefelsäure (H_2SO_4) und Wasserstoffperoxid (H_2O_2) im Mischungsverhältnis 1 : 1 gereinigt. Eine Adhäsionsschicht aus *hydrogen silsesquioxane* (HSQ) wird mit einer Lackschleuder (*Delta 80BM Gyrset*, Süss) auf das Siliziumsubstrat aufgebracht. Die aufgeschleuderte HSQ-Schicht (*XR-1541-002*, DowCorning) weist eine Schichtdicke von lediglich 50 nm auf. Der Diamant wird auf eines der im Substrat vorhandenen Fenster positioniert, um so eine freistehende Diamantmembran zu erhalten. Hierbei ist zu beachten, dass dieses Fenster während des Aufschleuderns der HSQ-Schicht über der Vakuumsaugung so positioniert ist, dass das sich in diesem Fenster ansammelnde HSQ unmittelbar abgesaugt wird. Wird dies unterlassen, so zieht sich das dort angesammelte HSQ unter den freistehenden Teil des Diamantfilm, die Folge ist eine hohe Untergrundzählrate bei späteren Photolumineszenzmessungen.

Nach zwei kurzen Aushärteschritten für 2 min bei 130 °C sowie 2 min bei 230 °C werden die Proben im Vakuumofen für 8 h bei einer Temperatur von 600 °C final ausgehärtet. Wird HSQ auf Temperaturen über 435 °C erhitzt, so werden stabile Filme hoher Dichte erzeugt, da die bei niedrigeren Temperaturen vorherrschende Netzwerkstruktur kollabiert [240, 241]. Nach dem Aushärten bei hoher Temperatur weist HSQ einen Temperaturendeckungskoeffizienten von $\alpha_{HSQ} = 3 \text{ ppm K}^{-1}$ auf (zum Vergleich: $\alpha_{HSQ} = 19 \text{ ppm K}^{-1}$ nach Aushärten bei 400 °C) [242]. Dieser Zahlenwert stimmt exakt mit dem thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Silizium überein und weicht darüber hinaus kaum von dem Ausdehnungskoeffizienten von Diamant mit $\alpha_{Diamant} = 1 \text{ ppm K}^{-1}$ ab. Somit zeigt das gesamte Probensystem beim Erhitzen in einem Ofen aber auch beim Abkühlen in einem Kryostaten ein einheitliches Ausdehnungsverhalten. Das Auftreten von thermischen Verspannungen in der resultierenden Diamantmembran wird folglich minimiert. Die beschriebenen Eigenschaften machen die Klebeschicht somit insbesondere stabil für die Belastungen durch Ausheizen und Säurebäder, die im Anschluss an die Herstellung der photonischen Kristallstrukturen erforderlich sind.

Ein Aushärten bei 600 °C erhöht darüber hinaus die Beständigkeit von HSQ in Flusssäure. Verantwortlich dafür ist die erzielte stabilere und kompaktere Netzwerkstruktur. In Folge dessen bleibt die Klebeschicht sogar intakt, wenn eine als Maske für einen ICP-RIE Prozess genutzte zusätzlich aufgeschleuderte HSQ-Schicht (ausgehärtet bei 400 °C) nach Herstellung photonischer Strukturen wieder in Flusssäure entfernt wird. Nach etwa 15 Minuten in Flusssäure (gepufferte

Lösung mit einer HF-Konzentration von 12,5%) ist die als Ätzmaske genutzte HSQ-Schicht von der Diamantoberfläche vollständig entfernt, wohingegen die bei hoher Temperatur ausgehärtete HSQ-Klebeschicht zwischen Substrat und Diamant nur leicht angegriffen wird.

Zum finalen Ausdünnen der Diamantmembranen bis auf die Zielschichtdicke wird im Anschluss erneut der beschriebene RIE-Prozess eingesetzt. Das hergestellte Probensystem erlaubt dabei sowohl ein lokales Ätzen der Diamantschicht von der Rückseite durch die Fenster des Siliziumsubstrats als auch von der Oberseite über die gesamte Diamantmembran hinweg.

6.1.2 Herstellung von Diamantmembranen in einem Volldiamantsystem

Beginnend bei dem gleichen hochreinen Diamanten als Ausgangsmaterial (*electronic grade* Qualität, ElementSix) wurden im Rahmen dieser Arbeit auch dünne freistehende Diamantmembranen in einem reinen Diamantsystem hergestellt. Die 30 μm dicken Diamantfilme werden dazu zunächst wie im Abschnitt zuvor beschrieben mit Flusssäure gereinigt. Anschließend wird von beiden Seiten 5 μm der Oberfläche entfernt, um einen 20 μm dicken Diamantfilm bestmöglicher Qualität zu erhalten. Nach Reinigung in einer Mischung aus Schwefelsäure (H_2SO_4) und Wasserstoffperoxid (H_2O_2) im Mischungsverhältnis 1 : 1 wird eine Glasplatte auf dem Diamanten befestigt. Diese bedeckt die gesamte Diamantprobe bis auf einen etwa 0,5 mm \times 1 mm großen Bereich und fungiert im RIE-Prozess als Ätzmaske. Das zugrundeliegende Design der Glasmasken wurde von der Arbeitsgruppe von Elke Neu an der Universität des Saarlandes in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Patrick Maletinsky an der Universität Basel entwickelt [100, 238]. Die Besonderheit bei diesem Maskendesign besteht darin, die Kanten der Glasmasken mit einer Keilform von typischerweise 30° zu versehen.

Für die im Rahmen dieser Arbeit von uns hergestellten Glasmasken wurde ein dünner Objektträger aus hochreinem Quartzglas (*Quartz Coverslip 25.4x25.4x0.100mm*, SPI Supplies) mit spezifizierten Dicken zwischen 75 μm und 125 μm verwendet. Quartzglas dieser Dicke ist ohne zu brechen handhabbar und kann sogar über mehrere Ätzprozesse hinweg verwendet werden. Die Glasmasken werden zunächst zwischen zwei Opfergläsern aus herkömmlichen Glas eingeklebt und am Photonikzentrum in Kaiserslautern kommerziell mittels Laserschneiden (Lasersystem *Hyper25*, Coherent) zugeschnitten. Anschließend werden die Masken in einer Drei-Säuren-Mischung aus Salpetersäure (HNO_3), Schwefelsäure (H_2SO_4) und Perchlorsäure (HClO_4) gereinigt und auf dem Diamanten positioniert. Im bereits beschriebenen RIE-Prozess wird der maskierte Diamant im Anschluss bis zum Erreichen der gewünschten Schichtdicke ausgedünnt.

In ersten Versuchen im Rahmen dieser Arbeit wurden zunächst Glasmasken mit senkrecht geschnittenen Kanten eingesetzt. Ein exemplarisches Ergebnis nach dem RIE-Prozess ist in den Abbildungen 6.3a-c zu sehen. Der Diamant wird offensichtlich an den Kanten der Maske mit einer höheren Rate geätzt als in der Mitte des Diamantfilms, was das Auftreten von Gräben an den Rändern der Membran zur Folge hat. Dies ist ein unerwünschter Effekt, da die Kanten für den Halt und die Stabilität des Volldiamantsystems von zentraler Bedeutung sind. An dieser Stelle ist anzumerken, dass eine derartige Beobachtung auch von den anderen genannten Arbeitsgruppen gemacht werden konnte.

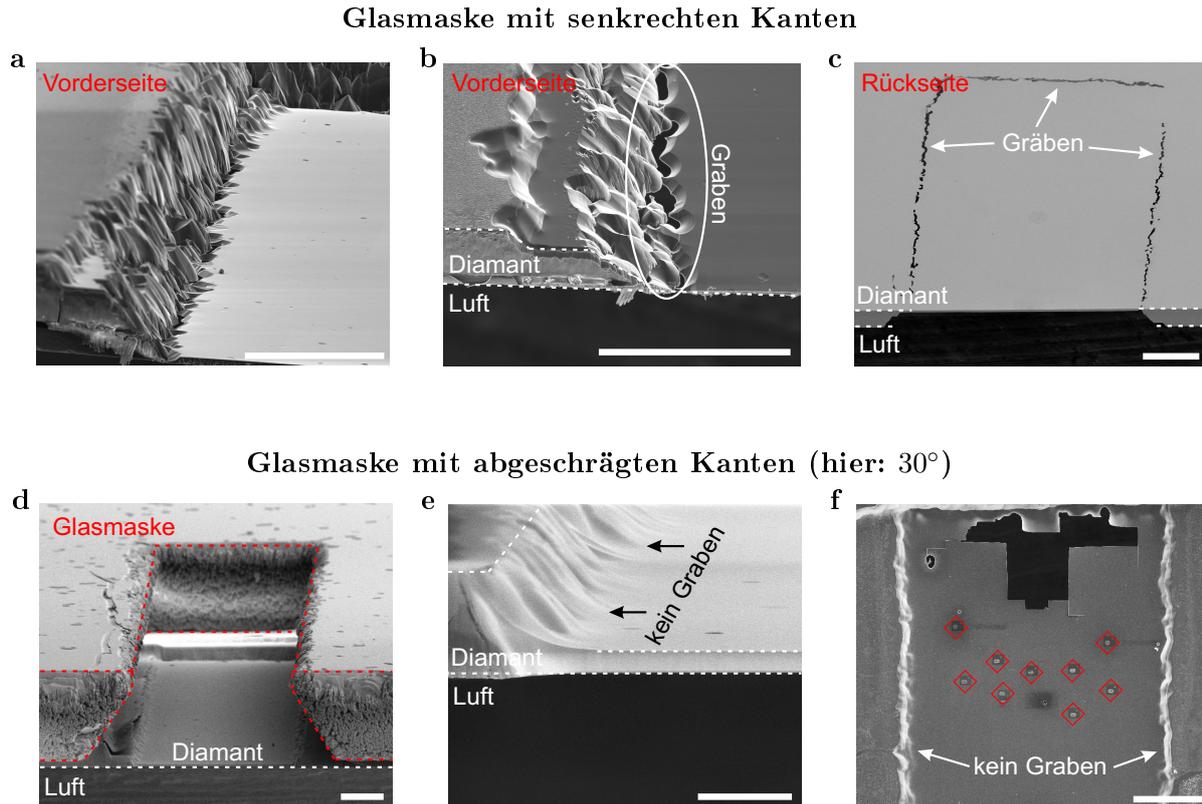


Abbildung 6.3: Diamantmembran im Volldiamantsystem. (a-c) REM-Bilder eines dünnen Diamantfilms, der mithilfe einer Glasmasken mit senkrechten Kanten geätzt wurde. Aufgrund der Reflexion von Ionen an den senkrechten Kanten der Maske wird die Diamantmembran an den Rändern mit einer höheren Rate geätzt als in der Mitte (a). Dies führt dazu, dass bei weiterer Ausdünnung Gräben an den Rändern der Membran auftreten (b). Der übrige Teil der Diamantmembran ist gleichmäßig ausgedünnt und glatt. Betrachtet man die Membran von der Rückseite her (c), so erkennt man deutlich, dass der Diamant entlang der Ränder größtenteils durchgeätzt ist. Die Gräben sind nur von wenigen Diamantstegen unterbrochen, die die Membran im Volldiamantsystem weiterhin fixieren. Die Oberfläche des dünnen Diamantfilms weist keinerlei Defekte auf. (d-f) REM-Bilder eines dünnen Diamantfilms, der mit einer Glasmasken mit abgeschrägten Kanten (hier: 30°) geätzt wurde. (d) Die Glasmasken bedeckt den Diamanten bis auf einen Ausschnitt von etwa $300\ \mu\text{m} \times 1000\ \mu\text{m}$, der dem RIE-Plasma ausgesetzt ist. Der Diamant wurde zuvor bereits mit einer breiteren Maske und anschließend mit dieser schmaleren Maske prozessiert. Die verbliebene Dicke der Membran beträgt $2\ \mu\text{m}$. Bei Verwendung einer Glasmasken mit abgeschrägten Kanten sind keine Gräben vorhanden (e und f), die Ränder der Membran fallen sanft ab (e). (f) Nach abgeschlossener Membranfabrikation wurden darin Resonatoren mittels FIB-Strukturierung hergestellt (rote Kästen). Die Membranoberfläche ist glatt und weist nur wenige Defekte auf. Ein Teil der Membran ist hier bereits herausgebrochen (schwarze Fläche). Die eingezeichneten Maßstabsleisten entsprechen einer Länge von $50\ \mu\text{m}$, mit Ausnahme bei (e) einer Länge von $10\ \mu\text{m}$.

Die Entstehung der Gräben lässt sich wie folgt erklären: In einem anisotropen Plasma treffen Ionen des Ätzplasmas in steilen Winkel größer als 80° auf die vertikalen Kanten der Glasmaske. Die Teilchen werden reflektiert und behalten dabei ihre Energie nahezu bei. Die reflektierten Ionen treffen auf die Diamantoberfläche in der Nähe der Basis der Glasplatte auf. Dieser Ionenfluss überlagert sich mit den Ionen, die ohne Reflexion an dieser Position der Oberfläche auftreffen, die Ätzrate wird an den Rändern der Membran folglich lokal erhöht [238]. An diesen Stellen entsteht ein Graben im Diamant, der bei wenigen hundert Nanometern dünnen Diamantmembranen sogar zu Durchbrüchen in der Diamantschicht führt [239]. Eine Lösung des Problems stellt die Verwendung von Glasmasken mit abgeschrägten Kanten dar, die durch die Keilform eine derartige Reflexion der Ionen unterbinden. In unserem RIE-Prozess wird darüber hinaus als weitere Vorsichtsmaßnahme die erste Hälfte des Ätzprozesses mit einer Maske der Breite $500\ \mu\text{m}$ wie beschrieben begonnen und die zweite Hälfte mit einer schmaleren Maske beendet.

In Abbildung 6.3d ist eine Diamantmembran mit einer darauf befestigten keilförmigen Glasmaske der zweiten Stufe (Breite $300\ \mu\text{m}$) in einer Aufnahme im Raster-Elektronenmikroskop (REM) abgebildet. Die Membran wurde zum Zeitpunkt der Abbildung bereits sowohl mit einer 500er-Maske als auch teilweise mit einer schmaleren 300er-Maske in einem RIE-Prozess ausgedünnt, erkennbar an den Stufen im Diamantfilm. Die endgültige Schichtdicke ist jedoch noch nicht erreicht. Es lässt sich jedoch bereits erkennen, dass die Diamantmembran gleichmäßig geätzt wird und keine bis kaum Defekte aufweist. In den Abbildungen 6.3e und 6.3f ist die Membran nach Fertigstellung zu sehen. Wie erhofft sind keine Gräben zu erkennen, die Membran ist dünn, von Luft umgeben, aber dennoch fest mit dem umgebenden Diamantmaterial verbunden.

6.2 Charakterisierung der Diamantmembranen

Zwei grundlegende Ansätze können unterschieden werden, um bei der Herstellung einer photonischen Kristallstruktur die passende Schichtdicke des Diamantfilms zu garantieren. Zum einen können Diamantmembranen genutzt werden, die direkt mit einer gleichmäßigen und passenden Dicke hergestellt werden. Eine derartige Membranherstellung gelingt etwa durch Anwenden der Technik des Polierens mithilfe einer vertieften Schablone, in die die Probe exakt eingelegt und zu einem planparallelen Diamantfilm ausgedünnt wird [243]. Alternativ können aber auch Membranen mit all ihren existierenden Variationen in der Dicke genutzt werden. Um dennoch photonische Kristallstrukturen bei passender Schichtdicke herstellen zu können, ist es jedoch unerlässlich, den dünnen Diamantfilm umfassend zu charakterisieren. Die zuletzt genannte Option weist den Vorteil auf, dass diese bei beiden im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Probensystemen angewendet werden kann. Ein Polieren mithilfe einer Schablone ist hingegen bei dem entwickelten Volldiamantsystem nicht möglich. Des Weiteren liefert eine gründliche Charakterisierung der Probe nicht nur Informationen bezüglich der vorliegenden Schichtdicke, sondern auch Informationen über eventuell vorhandene lokale Defekte oder Unebenheiten der Oberfläche des Diamantfilms. Nach erfolgter Charakterisierung sollten idealerweise die exakten Dicken der Diamantmembran an jeder Position sowie die Lage jedes einzelnen Defekts bekannt sein.

Vier verschiedene Methoden werden eingesetzt, um die Schichtdicke sowie die Homogenität der dünnen Diamantfilme zu kartieren. Transmissionsspektroskopie mit Weißlicht wird genutzt, um die durchschnittliche Diamantdicke während des RIE-Prozesses anhand von Dünnschichtinterferenzen zu kontrollieren. Die Diamantmembranen werden nach Herstellung darüber hinaus mithilfe eines Laser-Abrasterungs-Mikroskops kombiniert mit einer hochauflösenden Weißlichtabbildung untersucht, um eine Karte mit Informationen über lokale Variationen in der Schichtdicke sowie Oberflächendefekte zu erhalten. Messungen an Querschnitten im Diamant werden anschließend durchgeführt, um einen Absolutwert für die Dicke des Diamantfilms an einer Stelle zu erhalten. Zum Abschluss gibt die quantitative energie-dispersive Röntgenspektroskopie Aufschluss über Unebenheiten sowie kleinste Defekte in den Probenbereichen, die nach Charakterisierung der Probe mit den vorangegangenen drei Methoden für die potenzielle Herstellung photonischer Kristallstrukturen vorausgewählt wurden.

6.2.1 Transmissionsspektroskopie mit Weißlicht

Das verwendete Messgerät (*PDA Vis*, A.S. & Co. GmbH) besteht aus einem Spektrometer mit einem Photodiodenfeld, das an ein Lichtmikroskop (*Axioskop 2 MAT*, Zeiss) mit einem Objektiv 100-facher Vergrößerung und einer numerischen Apertur von 0,95 angeschlossen ist und im Transmissionsmodus betrieben wird. Eingestrahktes Weißlicht wird an der Ober- und Unterseite der Diamantmembran reflektiert und interferiert. In Folge dessen weist das gemessene Transmissionsspektrum Maxima und Minima auf, wobei der Abstand benachbarter Extremstellen unmittelbar von der Dicke der Diamantschicht abhängig ist. Der Durchmesser des Abbildungsfensters des Mikroskops beträgt bei Verwendung des 100-fach Objektivs etwa 150 μm . Dieser Abbildungsbereich deckt somit genau ein Fenster im Siliziumsubstrat ab, die ermittelte Schichtdicke stellt somit einen Mittelwert über die gesamte freistehende Diamantmembran dar.

Der größte Vorteil dieser zerstörungsfreien Charakterisierungsmethode ist ihre Einfachheit, da keine besondere Umgebung wie etwa Vakuum benötigt wird und darüber hinaus die Messung über eine ganze freistehende Membran hinweg in einem einzigen Schritt innerhalb von Sekunden erfolgen kann. Daher ist diese Methode bestens geeignet, um das Ausdünnen der Diamantfilme durch den RIE-Prozess effektiv zu überwachen. Allerdings können mithilfe dieser Charakterisierungstechnik weder lokale Unterschiede in der Schichtdicke noch eventuell vorhandene Defektstellen innerhalb des Diamantfilms detektiert werden. Ferner ist die Genauigkeit der bestimmten Durchschnittsdicke auf ± 50 nm limitiert.

6.2.2 Laser-Abrasterungs-Mikroskopie und Weißlichtabbildungen

Das verwendete Messgerät (*LEXT OLS4100*, Olympus) ist ein Mikroskop mit zwei Betriebsmodi, Laser-Abrastern mit einem Laserstrahl der Wellenlänge $\lambda = 405$ nm (*laser scanning microscopy*, LSM) und Untersuchung der Probe mithilfe eines CCD-Detektors unter Beleuchtung mit einer integrierten Weißlichtquelle. Das Gerät wird im Folgenden als LSM-Gerät bezeichnet.

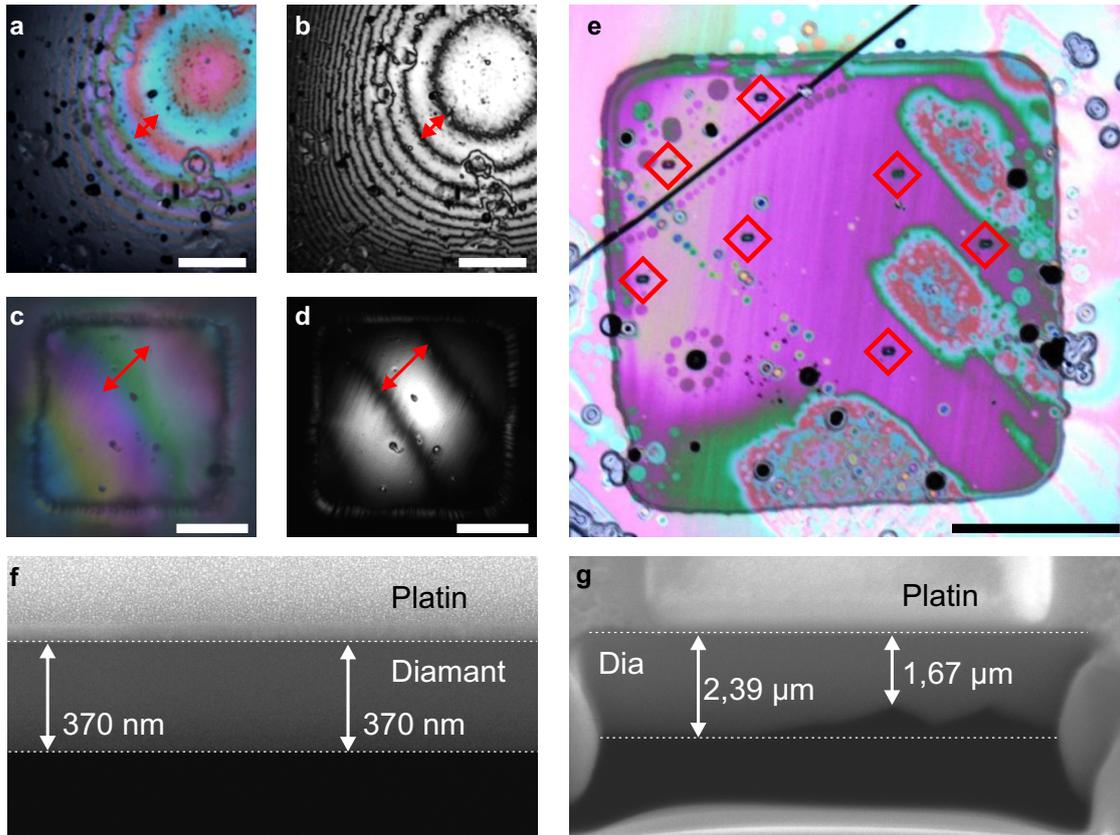


Abbildung 6.4: Charakterisierung hergestellter einkristalliner Diamantmembranen. (a-e) Weißlichtabbildungen und LSM-Aufnahmen. Proben, die von der Rückseite her ausgedünnt wurden, zeigen eine starke Krümmung (a und b), wohingegen Proben, die von der Oberseite her geätzt wurden, eine deutlich homogenere Schichtdicke aufweisen (c und d). Die roten Pfeile kennzeichnen jeweils die Strecke, über die die Schichtdicke um 84 nm variiert. Die in (e) abgebildete Diamantmembran weist große defektfreie und glatte Bereiche auf. Die roten Quadrate markieren die Positionen der darin hergestellten photonischen Kristallstrukturen. Die eingezeichnete Maßstabsleiste entspricht in allen Bildern 50 µm. (f und g) REM-Aufnahmen eines mittels FIB-Abtragung fabrizierten Grabens in einer defektfreien Region der Diamantmembran (f) und einer weniger geeigneten Region (g). Die REM-Bilder wurden ebenfalls mit dem FIB-Gerät aufgenommen. Die aufgedampfte Platin-schicht wird für den Querschnitt aus rein technischen Gründen benötigt.

Beide Betriebsmodi können bei den vorgestellten Probensystemen sowohl von der Oberseite als auch von der Rückseite her angewendet werden, um zum einen die Positionen von Oberflächen-defekten oder Löchern im Diamantfilm zu kartieren. Insbesondere ermöglicht der hochauflösende differenzielle Interferenzkontrast (DIC) im Laserbetrieb die realitätsgetreue Reproduktion der Oberflächenbeschaffenheit. Hierbei werden selbst nur wenige Nanometer große Defekte wie etwa lokale Höhenunterschiede zuverlässig aufgelöst. Des Weiteren erlaubt das Messgerät Unterschiede in der Schichtdicke über die Membran hinweg zu detektieren. Aufgrund der Laserwellenlänge von $\lambda_{\text{Dia}} = 168 \text{ nm}$ in Diamant ($n = 2,4$) ergibt sich die Variation der Schichtdicke Δd zwischen zwei

direkt benachbarten Bereichen destruktiver Interferenz zu $\Delta d = \lambda_{\text{Dia}}/2 = 84 \text{ nm}$. Die Bereiche destruktiver Interferenz sind in den LSM-Bildern als schwarze, ausgefranzte Linien zu erkennen, wie in den Abbildungen 6.4b und 6.4d exemplarisch dargestellt ist. Die integrierte Weißlichtquelle und der CCD-Detektor werden genutzt, um zusätzlich hochaufgelöste Farbaufnahmen der Oberflächen der Diamantmembranen anzufertigen, wie in den Abbildungen 6.4a und 6.4c exemplarisch dargestellt ist. Die verschiedenfarbigen Interferenzsäume können unterschiedlichen Schichtdicken zugeordnet werden. Aufgrund der Verwendung einer Weißlichtquelle mit kontinuierlichem Spektrum sind diese Aufnahmen folglich für die kontinuierliche Kartierung der Schichtdicke bestens geeignet. Die Kombination beider Betriebsmodi des LSM-Geräts liefert für die Oberflächen der Diamantfilme jeweils eine vollständige Karte, die vorhandene Löcher, Defekte oder auch Unterschiede in der Schichtdicke aufzeigt. Aufgrund der durchgeführten Messungen können etwa im Anschluss zuverlässig Gebiete ausgewählt werden, die potenziell für die Fabrikation photonischer Kristallstrukturen in Frage kommen.

Das LSM-Gerät wurde im Rahmen dieser Arbeit zunächst genutzt, um bei dem Probensystem bestehend aus einer freistehenden Diamantmembran auf einem strukturierten Siliziumsubstrat Variationen der Schichtdicke bei Proben, die von der Rückseite her ausgedünnt wurden, mit Variationen der Schichtdicke bei Proben, die von der Oberseite her geätzt wurden, zu vergleichen. Die Ausdünnung von der Rückseite her (Abbildung 6.4a und 6.4b) führt zu einer starken Krümmung der prozessierten Oberfläche, während das Ausdünnen von der Oberseite her (Abbildung 6.4c und 6.4d) zu fast ebenen Oberflächen führt. Ursache dafür ist höchstwahrscheinlich das $500 \mu\text{m}$ dicke Siliziumsubstrat, das beim Ätzen von der Rückseite her wie eine Maske fungiert und die Kanten abschattet. Aufgrund dieser Resultate werden im Folgenden bei Verwendung dieses Probensystems ausschließlich von der Oberseite her geätzte Diamantmembranen als Basis für die zu fertigenden photonischen Nanostrukturen gewählt.

Sowohl die Anfertigung der LSM-Aufnahmen als auch der Weißlichtabbildungen erfolgen mit dem LSM-Gerät zerstörungsfrei. Darüber hinaus werden die Eigenschaften eventuell zuvor implantierter oder eingewachsener Farbzentren nicht beeinflusst. Da das Gerät eine Reflexionsgeometrie nutzt, könnten sogar Membranen zumindest von der Oberseite her charakterisiert werden, die auf ein Siliziumsubstrat ohne Fenster aufgeklebt wurden. Ferner können auch Diamantmembranen, auf deren Vorderseite bereits ein Chromfilm für die spätere FIB-Strukturierung aufgebracht wurde, noch von der Rückseite her charakterisiert werden. Neben all diesen Vorteilen weisen die dargelegten vielversprechenden Charakterisierungsmethoden mit dem LSM-Gerät jedoch auch eine Einschränkung von zentraler Bedeutung auf, sie liefern lediglich Aussagen über Unterschiede in den lokalen Schichtdicken und keine absoluten Werte. Ist jedoch die Schichtdicke an einer einzigen Position der Diamantmembran bekannt, etwa aufgrund eines durchgeführten Querschnitts, so kann diese Einschränkung ausgehebelt werden, wie im nächsten Abschnitt dargelegt wird.

6.2.3 Messungen an Querschnitten in Diamant

Mit einem FIB-Gerät (*Helios NanoLab 600*, FEI) wurden $7 \mu\text{m}$ lange Gräben in der Diamantschicht durch Abtrag von Kohlenstoffatomen per Ionenbeschuss hergestellt. Die lokale Dicke der

Diamantmembran kann anschließend aus aufgenommenen REM-Bildern an verschiedenen Positionen entlang des Grabens abgeleitet werden, wie in den Abbildungen 6.4f und 6.4g exemplarisch dargelegt ist. Die lokale Schichtdicke am Ort des Grabens ergibt sich schließlich als Mittelwert der einzelnen Messwerte.

Aus technischen Gründen ist die Ablagerung einer Platinschicht erforderlich, bevor der Graben durch den Ionenstrahl fabriziert werden kann. Sowohl beim Auftragen gestreutes Platinmaterial als auch der Graben selbst machen jedoch die Fertigung einer photonischen Struktur in unmittelbarer Nähe der Messstelle unmöglich. Folglich liefert diese Methode zwar eine gute Näherung für die Dicke der Diamantschicht an einem bestimmten Ort, aber weder eine exakte Dicke an einer bestimmten Stelle auf der Probe, an der eine photonische Struktur gefertigt werden könnte, noch eine zuverlässige Aussage über Variationen der Schichtdicke in dieser Probenregion.

Diese Nachteile können jedoch ausgeglichen werden, indem bisher angesprochene Methoden zur Charakterisierung der Diamantmembranen kombiniert werden. Ein Querschnitt liefert dabei die absolute Schichtdicke an einem festen Ort der Probe. LSM-Messungen und die Weißlichtabbildungen erlauben im Anschluss die Bestimmung der absoluten Schichtdicke an jeder anderen beliebigen Stelle der Probe aufgrund der durch die Abbildungen bekannten relativen Variation der Schichtdicke zwischen dieser Stelle von Interesse und dem Ort des Querschnitts.

6.2.4 Quantitative energie-dispersive Röntgenspektroskopie

Energie-dispersive Röntgenspektroskopie (*energy dispersive X-ray spectroscopy*, EDX) wird üblicherweise zur Materialanalyse eingesetzt, um etwa herauszufinden, aus welchen Stoffen eine Probe aufgebaut ist. Dazu wird ein Elektronenstrahl auf die Probe fokussiert und die resultierende Intensität der Röntgenstrahlung energieaufgelöst gemessen. Die verschiedenen Elemente des Periodensystems können dabei aufgrund ihrer charakteristischen Energien im Röntgenspektrum eindeutig identifiziert werden.

Die Neuheit in der Verwendung der EDX-Einheit (*Apollo XV Silizium Drift-Detektoren (SSD) mit Genesis 6.3 Software*, EDAX) besteht in dieser Arbeit darin, dass normierte Zählraten als Maß für die lokale Schichtdicke des Diamantfilms herangezogen werden. Die EDX-Messungen werden dazu mit einer Integrationszeit von 20 s pro Punkt und einer Beschleunigungsspannung von 20 kV durchgeführt. Für einen dünnen Diamantfilm ist ein linearer Zusammenhang zwischen der Anzahl der von der EDX-Einheit bei Kohlenstoffenergien registrierten Ereignissen und der Schichtdicke der Diamantmembran zu erwarten, da die theoretische Eindringtiefe der Elektronen in Diamant mit 1700 nm für die im Experiment gewählte Beschleunigungsspannung von 20 kV als groß im Vergleich zur tatsächlichen Dicke der untersuchten Diamantfilme angenommen werden kann. Der Großteil der auftreffenden Elektronen wird somit durch die Membran transmittiert.

In einem ersten Schritt wurde die Kohlenstoff K_{α} -Röntgenintensität im ungedünnten Bereich des Diamanten gemessen, in dem die Probe für den Elektronenstrahl als unendlich dick erscheint (Volldiamant-Intensität). In einem zweiten Schritt wurde die Messung an mehreren anderen Stellen auf der dünnen Diamantmembran wiederholt und mithilfe der Volldiamant-Intensität normiert. Im Anschluss daran wurden Querschnitte angefertigt, um die exakte Schichtdicke an

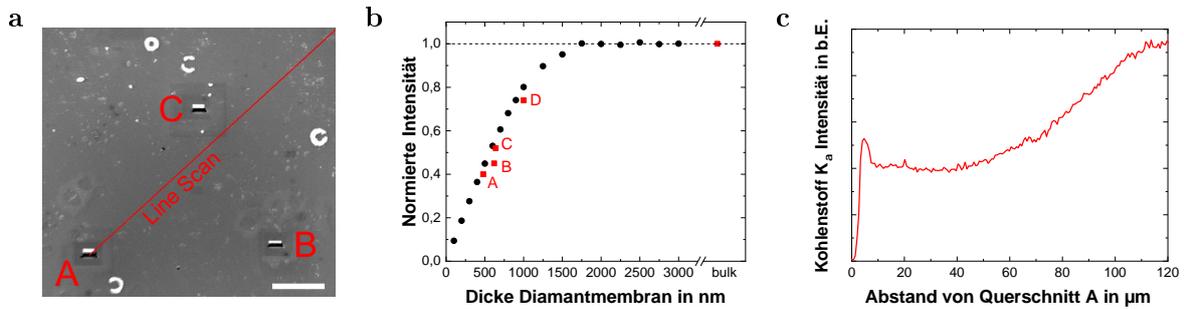


Abbildung 6.5: Quantitative EDX-Messung einer von der Rückseite ausgedünnten Diamantmembran mit ausgeprägter Inhomogenität der Schichtdicke. Im REM-Bild (a) sind drei Querschnitte A, B und C in der Nähe der Mitte der Membran zu sehen, ein vierter Querschnitt D erfolgte außerhalb des Bildbereichs. Die rote Linie deutet den Verlauf der EDX-Abrasterung an, deren Messergebnisse in (c) dargestellt sind. Die angegebene Maßstabsleiste entspricht einer Strecke der Länge $20\ \mu\text{m}$. (b) Simulierte (schwarz) und gemessene (rot) normierte Röntgenintensität als Funktion der Dicke des Diamantfilms, der bereits mit einer $80\ \text{nm}$ dicken Chromschicht für die spätere FIB-Strukturierung bedeckt wurde. Der für Diamantvollmaterial gemessene Wert dient jeweils als Referenz für die normierten Intensitäten. (c) Eindimensionale EDX-Abrasterung. Die Intensitätserhöhung lässt auf eine Erhöhung der Schichtdicke bei Annäherung an die Randzonen der Membran schließen. Zu Beginn der Messung ist die Intensität der Kohlenstoff K_{α} -Linie innerhalb des Querschnitts A erwartungsgemäß auf die Dunkelzählrate reduziert.

den gleichen Stellen auf der Membran zu bestimmen und diesen Dicken eine normierte Intensität zuzuordnen. Die so erhaltenen Messwertepaare sind in Abbildung 6.5b eingezeichnet.

Um die aufgestellte Hypothese eines linearen Zusammenhangs zwischen Schichtdicke und Röntgenintensität zu testen und darüber hinaus den Einfluss einer eventuell bereits für die spätere FIB-Strukturierung aufgebrachtene Chromschicht auf die Charakterisierungsmethode zu untersuchen, wurden zusätzlich Monte-Carlo-Simulationen zur erwartenden Erzeugung von Röntgenphotonen durchgeführt (*CASINO v2.48*, Université de Sherbrooke) [244]. In den Simulationen wurden Diamantfilme verschiedener Dicken und einer zusätzlich aufgebrachtene $80\ \text{nm}$ dicken Chromschicht mit jeweils 5000 Elektronen der Energie $20\ \text{keV}$ bestrahlt. Der Aufsammelwinkel (*take off angle*) des Detektors wurde dabei so wie im realen Experiment vorliegend gewählt. Die Simulationen lieferten die erzeugte und die abgestrahlte Röntgenintensität als Funktion der Eindringtiefe im Material unter Beachtung der Absorption sowohl durch die Chromschicht als auch durch den Diamantfilm selbst. In Abbildung 6.5b ist die normierte emittierte Gesamtintensität in die Kohlenstoff K_{α} -Linie dargestellt, normiert mit dem zuvor gemessenen Wert in Volldiamant. Bis zu einer Dicke der Diamantmembran von etwa $1000\ \text{nm}$ lässt sich ein linearer Zusammenhang erkennen. Die simulierte Chromschicht hat offensichtlich keine Auswirkungen auf die Linearität der Kurve. Oberhalb dieser Schichtdicke nähert sich die Dicke der Membran der Eindringtiefe der Elektronen an, die Röntgenintensität erreicht erwartungsgemäß ab einer Eindringtiefe von etwa $1700\ \text{nm}$ ein stabiles Plateau (Volldiamant-Intensität). Die ebenfalls in Abbildung 6.5b eingezeichneten Messwertepaare stimmen mit diesen simulierten Werten gut überein.

Aufgrund des bestätigten linearen Zusammenhangs kann die lokale Schichtdicke dünner Diamantfilme zuverlässig mittels der EDX-Methode ermittelt werden. Lediglich ein einziger Querschnitt pro Probe in Kombination mit der Messung der Intensität der Kohlenstoff K_{α} -Linie im Voll-diamanten ist notwendig, um eine absolute Skalierung der späteren Messwerte vornehmen zu können. Im Anschluss daran kann die Dicke des Diamantfilms an jeder beliebigen Position mit einer einzigen Messung durch quantitatives EDX bestimmt werden. Um einen schnellen Eindruck von der lokalen Dicke der Diamantmembran zu erhalten, kann sogar auf den FIB-Querschnitt verzichtet und sich stattdessen auf die simulierte Kurve verlassen werden.

Im Gegensatz zu den beschriebenen optischen Methoden zur Charakterisierung der Membran ist quantitatives EDX jedoch aufgrund des Zeitbedarfs auf kleine Ausschnitte der Probe beschränkt, wie etwa vorausgewählte Stellen für die spätere Produktion von Resonatoren ($6\ \mu\text{m} \times 6\ \mu\text{m}$). Die in Abbildung 6.5c dargestellte eindimensionale EDX-Abrasterung hat beispielsweise bei der gewählten Auflösung von 300 nm eine Zeitspanne von 15 min in Anspruch genommen. Das Abrastern einer ganzen Membran beispielsweise der Größe $150\ \mu\text{m} \times 150\ \mu\text{m}$ zur Bestimmung der lokalen Schichtdicken würde bei dieser immer noch recht groben Auflösung etwa 70 h dauern. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit die Methode der quantitativen EDX-Messung lediglich eingesetzt, um lokale Inhomogenitäten der Schichtdicke in kleinen Regionen zu bestimmen, die für die spätere Herstellung von photonischen Kristallstrukturen in Frage kommen.

Mithilfe der quantitativen EDX-Methode können selbst kleinste Defekte, die in LSM-Bildern oder auch Weißlichtabbildungen kaum wahrzunehmen sind, zuverlässig bis hinunter zur Größenordnung des Durchmessers des Elektronenstrahl von etwa 10 nm detektiert werden. Folglich ist die quantitative EDX-Messung eine wirkungsvolle lokale Technik, die die zuvor dargelegten Methoden zur Charakterisierung der Diamantmembran gewinnbringend ergänzt. Als weitere Stärke dieser Methode ist anzuführen, dass keine besondere Probenvorbereitung erforderlich ist. Selbst Diamantfilme, auf denen bereits eine Chromschicht für die spätere FIB-Strukturierung oder eine (kohlenstofffreie) Maske für einen ICP-RIE-Prozess von Nanostrukturen aufgebracht wurde, können charakterisiert werden. Jedoch ist sicherzustellen, dass eventuell auf den Diamanten aufgebrachte Schichten dünn genug sind, sodass sowohl die Absorption eingestrahelter Elektronen als auch emittierter Röntgenphotonen vernachlässigt werden kann.

Die EDX-Technik ist darüber hinaus zerstörungsfrei hinsichtlich der Diamantmembran, allerdings können in dem Diamanten enthaltene Farbzentren von den Elektronen beeinflusst werden. Aufgrund einer möglicherweise auftretenden Anreicherung von Ladungsträgern im Diamant oder auch einer möglichen Anlagerung von Restgasen auf der untersuchten Diamantoberfläche können darin enthaltene Farbzentren veränderte Fluoreszenzeigenschaften aufweisen bis hin zur vollständigen Auslöschung der Emission. Dieser Nachteil kann jedoch problemlos umgangen werden, indem die Farbzentren erst nach Charakterisierung der Diamantmembran durch Implantation in die hergestellten photonischen Strukturen integriert werden. Der mögliche Einfluss auf Farbzentren schränkt jedoch die Anwendungsmöglichkeiten des quantitativen EDX-Verfahrens ein.

6.3 Herstellung von Resonatoren in dünnen Membranen

Für die Fabrikation der periodischen Anordnung von Luftzylindern in der dünnen Diamantmembran können sowohl die FIB-Strukturierung als auch Trockenätztechniken angewendet werden. Die erste Realisierung der gezielten Kopplung eines einzelnen Farbzentrums an eine Mode eines Resonators in einer photonischen Kristallstruktur gelang mit einem Resonator, der durch FIB-Strukturierung um ein SiV-Zentrum herum hergestellt wurde [237]. Die Prozessierung mit dem FIB-Gerät erlaubte dabei die deterministische Herstellung der photonischen Struktur um ein vorcharakterisiertes Farbzentrum unter Beachtung der vorliegenden Dipolorientierung.

Während die FIB-Strukturierung eine einfache und direkte Technik ist, die darüber hinaus ohne Maskierung der Probe auskommt, kann durch die Anwendung von RIE-Techniken ein höherer Produktionsdurchsatz an Resonatoren mit in der Regel höheren Gütefaktoren erzielt werden [81,82,85,86,219,234,245,246]. Insbesondere wurde, zunächst für eindimensionale photonische Kristalle, eine vielversprechende Fabrikationsmethode unter Verwendung von Siliziummasken entwickelt [219,246], mithilfe der auch Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen mit Gütefaktoren bis $Q = 8000$ realisiert werden konnten [85]. Zusätzlich wurde eine Technik entwickelt, um NV-Zentren durch die gleiche Siliziummaske bis auf eine Ortsungenauigkeit von etwa 42 nm in das Feldmaximum der Resonatormode zu implantieren [85,86].

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in Diamant durch FIB-Strukturierung hergestellt. Um mit dieser Fabrikationstechnik Resonatoren zu erhalten, deren Moden hohe Gütefaktoren bei der gewünschten Wellenlänge aufweisen, liegt die Herausforderung darin, Strukturen mit exakt positionierten Luftzylindern mit passenden Durchmessern und möglichst vertikalen Seitenwänden herzustellen. Eine Abweichung vom angestrebten Zylinderdurchmesser vermindert den Gütefaktor in Verbindung mit einer Verschiebung der spektralen Positionen der Resonatormoden (Abbildung 6.6a). Darüber hinaus ist bei photonischen Kristallstrukturen, die mit einem FIB-Gerät hergestellt wurden, oftmals ein Driften der Lochpositionen zu beobachten (Abbildung 6.6c). Auch dieser Effekt hat einen gravierenden Einfluss auf den Gütefaktor. Ferner hat die FIB-Strukturierung eine konische Form der Löcher zur Folge. Die Seitenwände können dabei durchaus einen Inklinationwinkel in der Größenordnung von 9° aufweisen (Abbildung 6.6d) [247]. Wie in Abbildung 6.6b exemplarisch dargestellt ist, verringert sich der simulierte Gütefaktor der Fundamentalmode einer der hergestellten Resonatortypen dadurch um über 90 % von $Q_{0^\circ} = 5200$ auf $Q_{9^\circ} = 500$.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden optimierte M0-Resonatoren, optimierte M3-Resonatoren, sowie M7-Resonatoren mittels FIB-Strukturierung hergestellt. Die Anzahl der mit dem FIB-Gerät zuverlässig herstellbaren Luftzylinder ist auf etwa 200 Luftzylinder pro Struktur begrenzt. Wird die Anzahl weiter vergrößert, so werden die Schwankungen in den Lochpositionen deutlicher und der Gütefaktor nimmt trotz Erhöhung der Anzahl der umgebenden Lochreihen bei den hergestellten Strukturen ab. Für diese zuverlässig herstellbare Anzahl an Luftzylindern beträgt der simulierte Gütefaktor der Fundamentalmode für den optimierten M3-Resonator $Q = 5200$ und für den M7-Resonator $Q = 5700$. Der optimierte M0-Resonator weist eine einzige Mode mit einem simulierten Gütefaktor von $Q = 320\,000$ auf.

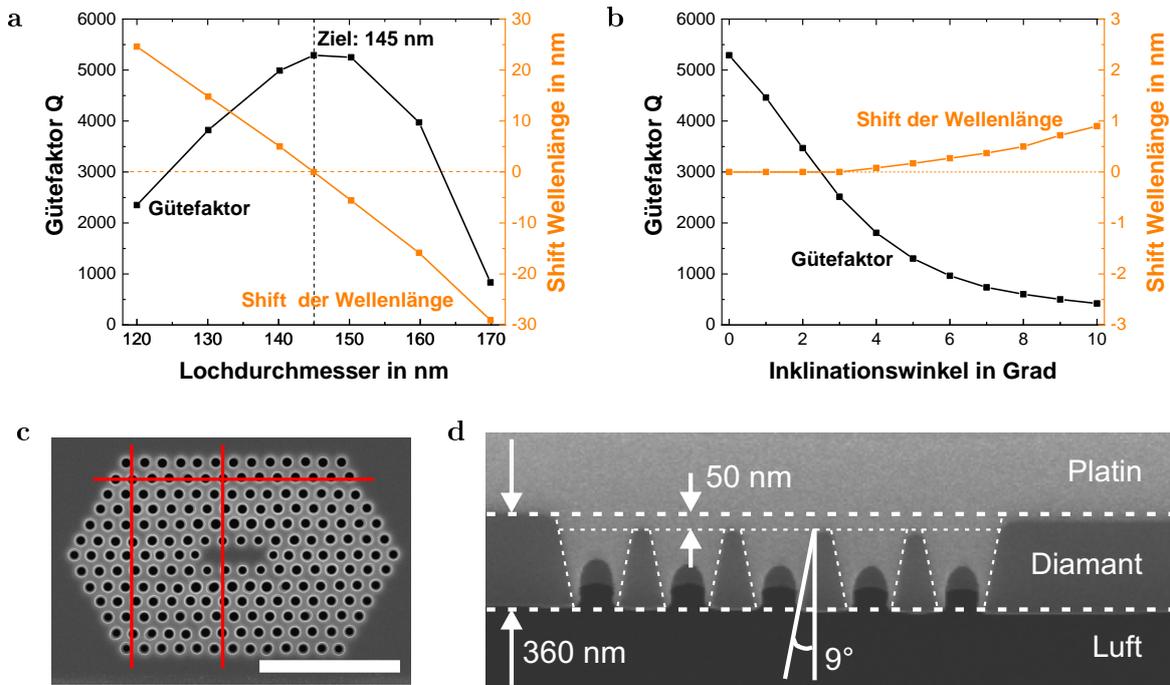


Abbildung 6.6: Fabrikationsbedingte Abweichungen bei der FIB-Strukturierung. (a und b) Simulationen von Gütefaktor (schwarz) und Verschiebung der Wellenlänge (orange) der Fundamentalmode des M3-Resonators als Funktion (a) des Lochdurchmessers (Zieldurchmesser: 145 nm) sowie (b) des Inklinationswinkels der Seitenwände der Luftzylinder. (c) REM-Bild einer hergestellten photonischen Kristallstruktur. Die Abweichungen der Lochpositionen bei Fixierung der Probe mit Kupferklebeband sind durch die Hilfslinien (rot) unmittelbar zu erkennen. Die eingezeichnete Maßstabsleiste entspricht einer Länge von $2\ \mu\text{m}$. (d) REM-Bild des FIB-Querschnitts durch eine photonische Kristallstruktur, die in einem $360\ \text{nm}$ dicken Diamantfilm hergestellt wurde. Das photonische Kristallgitter ist durch die Einwirkung des Ionenstrahls um etwa $50\ \text{nm}$ eingesunken. Des Weiteren weisen die Luftzylinder einen Inklinationswinkel von 9° auf. Die aufgebrauchte Platinschicht wird aus technischen Gründen für die Anfertigung des FIB-Querschnitts benötigt.

6.3.1 FIB-Strukturierung

Ein duales System (*Helios NanoLab 600*, FEI) mit einer REM-Einheit zur Abbildung der Probenoberfläche sowie einer Einheit mit einem fokussierten Ionenstrahl aus Galliumionen zur Probenstrukturierung wird eingesetzt, um die photonischen Nanostrukturen in den dünnen Diamantmembranen an den mithilfe der dargelegten Charakterisierungsmethoden ausgewählten Positionen herzustellen. Durch die auf die Diamantoberfläche beschleunigten und fokussierten Galliumionen werden Kohlenstoffatome aus dem Diamantgitter an der zu strukturierenden Stelle herausgeschlagen. Dieser Vorgang wird auch als Sputtern bezeichnet. Die Galliumionen werden in den durchgeführten Strukturierungen mit einer Spannung von $30\ \text{kV}$ beschleunigt, die Stärke des Ionenstroms beträgt $10\ \text{pA}$. Der Ionenstrahl weist bei diesen Parametern einen Durchmesser zwischen $10\ \text{nm}$ und $13\ \text{nm}$ auf. Mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen (*Stopping and Range of Ions in Matter*, SRIM) wird eine Quote von zwei entfernten Kohlenstoffatomen pro eingeschos-

senem Galliumion vorhergesagt. Dieser Wert stimmt mit gemessenen Quoten zwischen 2,3 und 2,7 Kohlenstoffatomen pro eingeschossenem Galliumion gut überein. Die erzielten Sputterraten liegen zwischen $0,08 \mu\text{m}^3\text{nC}^{-1}$ und $0,18 \mu\text{m}^3\text{nC}^{-1}$ [248, 249]. Verantwortlich für diese niedrigen Raten ist die hohe Oberflächenenergie von Diamant mit bis zu 7,40 eV.

Um die Probenposition während der FIB-Strukturierung kontrollieren und bei Bedarf auch korrigieren zu können, wird die Probe auf einem Verschiebetisch mit fünf Achsen (x , y , z , Rotation und Kippung) befestigt. Ein vom Hersteller des FIB-Geräts entwickeltes Programm zur Driftkontrolle überprüft regelmäßig eventuell entstandene Verschiebungen, indem es die Position des Probenstischs mit der Position einer Markierung (in der Regel ein zuvor strukturiertes Kreuz) in unmittelbarer Umgebung der photonischen Kristallstruktur im Diamanten abgleicht und wenn nötig die Position des Probenstischs relativ zum Ionenstrahl anpasst. Darüber hinaus konnte die Drift während des Strukturierungsprozesses recht einfach aber effektiv durch Festklemmen der Probe auf dem Halter anstelle des sonst üblichen Aufklebens mit Kupferklebeband wesentlich reduziert werden. Schwankungen in den Lochpositionen von im Durchschnitt 20 nm für mit Kupferklebeband fixierte Proben (siehe auch Abbildung 6.6c) konnten dadurch auf unter 7 nm reduziert werden. Diese verbleibende Schwankung in den Lochpositionen kann vollständig der gerätespezifischen Drift des Ionenstrahls zugeschrieben werden.

6.3.2 Metallschutzschicht und überhöhtes Galliumspattern

Sowohl aufgrund des gaußförmigen Profils im Zentrum des Ionenstrahls als auch aufgrund der nicht-gaußförmigen Ausläufer im Randbereich wird bei der FIB-Strukturierung stets auch Diamant außerhalb des intendierten Strukturierungsmusters abgetragen [250]. In Folge dessen wird ein Einsinken der Struktur und zusätzlich eine Kegelform der Löcher mit abgeschrägten Lochwänden beobachtet. Der Strahl aus Galliumionen wird nicht nur zum Strukturieren, sondern auch zur Driftkontrolle eingesetzt. Zu diesem Zweck rastert der Strahl in regelmäßigen Zeitabständen über einen Bereich der Probe, der neben der zur Korrektur angebrachten Markierung auch die bereits hergestellten Luftzylinder enthält. Dies führt zu einem zusätzlichen unerwünschten Abtrag von Diamant, die Diamantmembran wird wie etwa in Abbildung 6.6d zu erkennen ist weiter ausgedünnt, die Abschrägung der Lochwände der bereits hergestellten Löcher noch verstärkt. Simulationen sagen eine hierdurch hervorgerufene Verminderung des Gütefaktors sowie eine Verschiebung der Wellenlänge der Moden voraus (Abbildung 6.6a und 6.6b).

Um diesen unerwünschten Diamantabtrag zu verhindern, wird auf die Diamantoberfläche vor der FIB-Strukturierung ein 80 nm dicker Metallfilm aus Chrom aufgetragen. Die Chromschicht wird in einer Sputteranlage (*Univex 450C*, Oerlikon) mithilfe eines Argonplasmas bei einem Argonfluss von 30 sccm und einer Leistung von 200 W an die Diamantoberfläche angelagert. Chrom haftet gut an Diamant und kann ferner nach der FIB-Prozessierung wieder rückstandsfrei durch spezielle Säuremischungen entfernt werden. SRIM-Simulationen zeigen, dass die mit 30 kV beschleunigten Galliumionen nicht tiefer als 35 nm in die Metallschicht eindringen (Abbildung 6.7a). Der 80 nm dicke Metallfilm schirmt den Diamanten folglich mehr als ausreichend ab. Ein positiver Nebeneffekt der aufgetragenen Chromschicht ist die bessere Leitfähigkeit der Probe. Dadurch wird

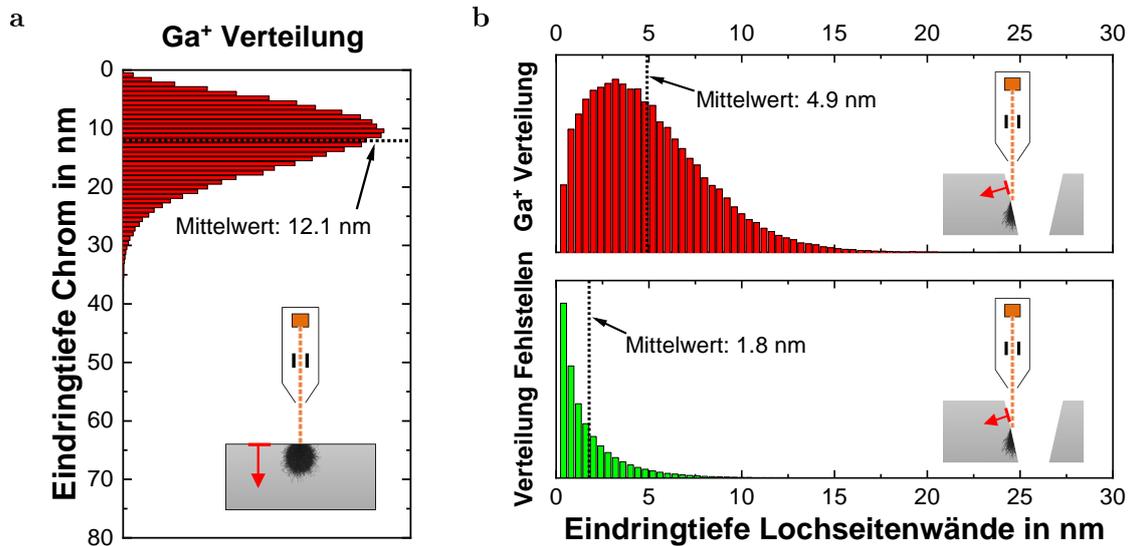


Abbildung 6.7: SRIM-Simulationen für Galliumionen, die mit einer Beschleunigungsspannung von 30 kV auf eine Chromschicht bzw. den zu strukturierenden Diamantfilm beschleunigt werden. (a) Galliumionen, die orthogonal auf die Chromschicht auftreffen, sind nicht in der Lage, einen 80 nm dicken Chromfilm zu durchdringen. (b) Laterale Eindringtiefe (rot) von Galliumionen in die Seitenwände der Luftzylinder bei einem Inklinationswinkel von 4° und Tiefe der erzeugten Fehlstellen (grün) im Diamantgitter. Fehlstellen werden bis in eine Tiefe von 10 nm erzeugt. Die Inlaygrafiken zeigen modellhaft das FIB-Gerät mit Ionenstrahl (orange) sowie die Bahnkurven der in den Diamanten eindringenden Galliumionen (schwarz).

eine potenzielle Aufladung des Diamanten aufgrund des Ionen- oder auch Elektronenbeschusses verhindert. Dies erlaubt eine deutlich bessere Auflösung bei Abbildungen durch den Elektronenstrahl sowie ein exakteres Fokussieren und Strukturieren mit dem Ionenstrahl.

Aufgrund des gaußförmigen Profils des Ionenstrahls ist es prinzipiell schwierig, durch FIB-Strukturierung perfekt senkrechte Wände der Luftzylinder zu erzielen. Stattdessen führt das Strahlprofil zu einem vergrößerten Lochdurchmesser an den oberen Kanten der Luftlöcher. Die Konsequenz sind strukturierte Luftkegel mit einem typischen Inklinationswinkel von 9° anstatt der angestrebten Luftzylinder. Eine mögliche Technik zur Reduzierung der Keilform ist, zusätzlich zum Aufbringen der Chromschicht, ein überhöhtes Galliumsputtern (*overmilling*). Hierzu wird das Sputtern mithilfe der Galliumionen nach Fertigstellung eines Luftloches in der Diamantmembran für eine gewisse Zeit fortgesetzt. Größere Sputterraten unter flachen Winkeln erhöhen dabei die Steilheit der Oberflächen der Seitenwände. Der aufgebrauchte Metallfilm wirkt hierbei als Maske, die die Entstehung von abgerundeten Ecken durch die Ausläufer des Ionenstrahls an der Oberseite der Luftlöcher verhindert. Mithilfe der Technik des überhöhten Galliumsputters können so kleinere Löcher hergestellt werden, der Abstand benachbarter Löcher verkleinert und steilere Lochwände erzielt werden. Die Kombination aus einer Schutzschicht aus Chrom und dem überhöhten Sputtern reduziert den Inklinationswinkel der Seitenwände der Löcher fundamental von etwa 9° auf Winkel unter 4° (Abbildung 6.8c). Dies hat für die hergestellten Strukturen eine Vervierfachung des simulierten Gütefaktors zur Folge.

6.3.3 Nachbehandlung der Proben

Galliumionen können die 80 nm dicke Schutzschicht aus Chrom zwar nicht durchdringen, aber die abgeschrägten Seitenwände der bereits strukturierten Löcher sind dem Ionenbeschuss ungeschützt ausgesetzt. Eine Folge des Ioneneinschlags sind Kaskaden von im Diamantgitter verschobenen Kohlenstoffatomen verbunden mit der Auflösung von sp^3 -Hybridisierungen. Im ansonsten perfekten Diamantgitter entstehen Fehlstellen. Darüber hinaus werden Galliumionen selbst als Defekte in den Diamanten implantiert. Um die geschädigten Bereiche des Diamanten zu entfernen oder wenn möglich die gute Ausgangsqualität wieder herzustellen, ist eine intensive Nachbehandlung der mit dem Ionenstrahl des FIB-Geräts strukturierten Proben erforderlich.

Nach Entfernen der Chromschicht in einer Säuremischung werden die Proben in Vakuum ($p \leq 10^{-6}$ mbar) für 2 h auf 1000 °C erhitzt. Ab einer Temperatur von 700 °C werden die implantierten Galliumionen beweglich, diffundieren zur Oberfläche des Diamantfilms und verdampfen [251]. Die erfolgreiche Entfernung von Gallium aus den prozessierten Diamantfilmen wurde mittels EDX mit einem Detektionslimit von unter 1 % nachgewiesen. Darüber hinaus kann das geschädigte Diamantgitter durch Erhitzen auf derart hohe Temperaturen vollständig wiederhergestellt werden, falls die Konzentration an Fehlstellen unterhalb einer Schwelle von etwa 10^{22} Fehlstellen pro Kubikzentimeter Diamant liegt [252]. Ist der Fehlstellenanteil hingegen größer als diese Schwelle, so wird das geschädigte Material in sp^2 -hybridisierten Kohlenstoff umgewandelt, vornehmlich in Graphit, aber auch in amorphen Kohlenstoff. Anschließende Nachbehandlungsschritte in Form von Erhitzen der Probe in Luftatmosphäre auf Temperaturen von 450 °C sowie chemische Säurebäder (1:1 Mischung von H_2SO_4 : H_2O_2 oder der angesprochene Drei-Säuren-Mix) stellen die rückstandsfreie Entfernung des sp^2 -hybridisierten Kohlenstoffs sicher.

Die Umwandlung und anschließende Entfernung des geschädigten Materials führt jedoch zu einer Vergrößerung der Lochdurchmesser. Weitere SRIM-Simulationen wurden durchgeführt, um eine Abschätzung für die Verbreiterung der Löcher zu erhalten. Dazu wurde, wie bei den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten photonischen Kristallstrukturen vorliegend, ein Inklinationswinkel von 4° angenommen. Die simulierten Galliumionen dringen bis zu 20 nm tief in lateraler Richtung in die keilförmigen Seitenwände der Löcher ein, Fehlstellen werden dabei hauptsächlich bis zu einer Tiefe von 10 nm im Diamanten erzeugt (Abbildung 6.7b). Diese Tiefe stellt somit die Obergrenze für die Vergrößerung der Lochradien dar. Messungen basierend auf REM-Bildern lassen auf eine Vergrößerung der Lochradien um 10 nm bis 12 nm nach Ausführung aller Nachbehandlungsschritte schließen. Der leicht größere Wert ist höchstwahrscheinlich auf eine zusätzliche, in den Simulationen nicht berücksichtigte Entfernung von Diamant durch das Ausheizen an Luft zurückzuführen. Diese Verbreiterung muss bereits im Voraus bei Entwurf einer Vorlage für die FIB-Strukturierung der Resonatoren berücksichtigt werden.

6.3.4 Analyse der hergestellten Resonatoren

M0, M3 sowie M7-Resonatoren wurden mit allen dargelegten FIB-Optimierungen in vier verschiedenen dünnen Diamantmembranen hergestellt, zwei davon waren Membranen in einem Volldia-

mantsystem und zwei in einem hybriden System auf einem Siliziumsubstrat. Die photonischen Nanostrukturen wurden jeweils deterministisch an Orten hergestellt, die zuvor mit den dargelegten Charakterisierungsmethoden ausgewählt wurden.

Wie in Abbildung 6.8 zu erkennen ist, stimmen die resultierenden Strukturen sehr gut mit den intendierten periodischen Lochmustern überein. Ferner wird kein Einsinken beobachtet. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass die unstrukturierten Teile der Diamantoberfläche zwischen den Luftzylindern während der FIB-Strukturierung durch die Chromschicht vor den Galliumionen ausreichend geschützt waren. Anhand eines exemplarischen Querschnitts in Abbildung 6.8c lässt sich ferner erkennen, dass die Kanten der Lochzylinder scharf begrenzt sind und keine abgerundeten Ecken aufweisen. Des Weiteren konnte der Inklinationswinkel der Seitenwände der Löcher auf unter 4° reduziert werden. Da die Strukturen für die FIB-Querschnitte jeweils mit den gleichen Parametern und teilweise sogar im gleichen Fabrikationsdurchlauf hergestellt wurden, kann angenommen werden, dass die Seitenwände der Luftzylinder der Resonatoren ebenfalls Abschrägungen in dieser Größenordnung aufweisen. Diese Verbesserung kann sowohl der Chromschicht als auch dem überhöhten Galliumspattern zugeschrieben werden.

Die optischen Eigenschaften der hergestellten Resonatoren wurden mithilfe des in Kapitel 5 beschriebenen Konfokalaufbaus untersucht. Die Messungen wurden bei Raumtemperatur unter kontinuierlicher Laseranregung bei 532 nm durchgeführt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden insgesamt 35 M3 und M7-Resonatoren sowie 6 M0-Resonatoren mit den diskutierten Verbesserungen in zuvor mit den beschriebenen Methoden charakterisierten Diamantmembranen gefertigt. Jeder M0-Resonator weist dabei wie zu erwarten eine einzige Mode auf, die M3 und M7-Resonatoren zeigen jeweils mehrere klar erkennbare Moden. Die Ausbeute an mit den dargelegten optimierten Methoden hergestellten Resonatoren mit Nachweis von Moden beträgt etwa 95 %.

Die erzielten spektralen Positionen der Fundamentalmoden stimmen dabei sehr gut mit den angestrebten Werten überein. Dies kann als Nachweis dafür angesehen werden, dass die zuvor diskutierten Charakterisierungsmethoden die Auswahl von Orten mit passender Schichtdicke erlauben und die optimierte FIB-Strukturierung eine präzise Fabrikation photonischer Nanostrukturen ermöglicht. Die gemessenen Gütefaktoren der Resonatoren variieren für die Fundamentalmoden der M3-Resonatoren zwischen 480 ± 20 und 870 ± 20 (Abbildung 6.8d) sowie zwischen 500 ± 20 und 800 ± 20 für die Fundamentalmoden der M7-Resonatoren. Selbst die für Fabrikationsabweichungen anfälligen M0-Resonatoren zeigen alle jeweils eine Mode in der optischen Analyse mit Gütefaktoren zwischen 1200 ± 25 und 8250 ± 80 , wobei die meisten Vertreter Gütefaktoren zwischen $Q = 1500$ und $Q = 2200$ aufweisen (Abbildung 6.9). Des Weiteren bestätigen zusätzlich aufgenommene Spektren mit einem Polarisationsfilter im Detektionsstrahlengang, dass es sich bei der Fundamentalmode des M0-Resonators, wie bereits in den Simulationen in Kapitel 4 vorhergesagt, um eine *e*-Mode handelt.

Wird exemplarisch der Beste der hergestellten M3-Resonatoren betrachtet, so weicht der im Experiment erzielte Gütefaktor mit $Q_{\text{exp}} = 870$ erheblich von dem theoretisch simulierten Wert von $Q_{\text{theo}} = 5200$ ab. Eine Ursache für diese Abweichung ist die weiterhin vorhandene Kegelform der strukturierten Luftzylinder. Wird der gemessene Inklinationswinkel von 4° in den Simulationen berücksichtigt, so reduziert sich der theoretisch vorhergesagte Gütefaktor der Fundamentalmode

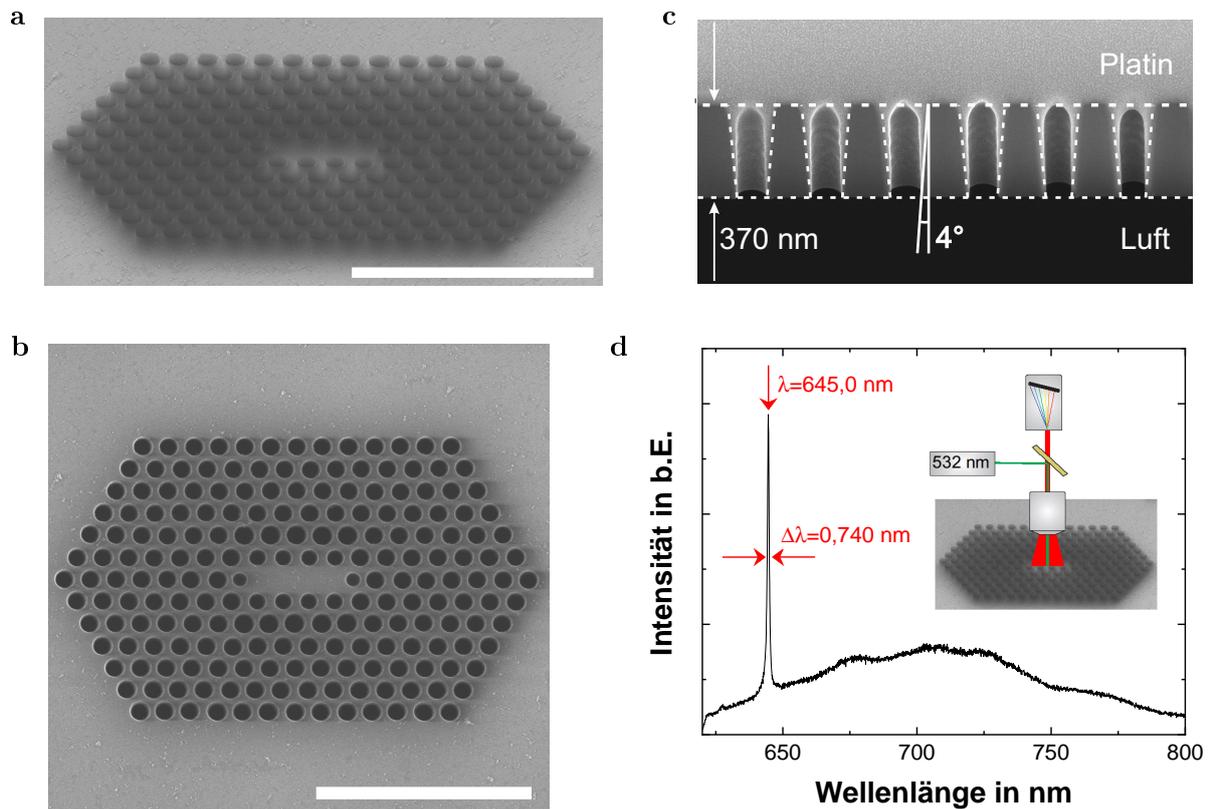


Abbildung 6.8: Analyse hergestellter Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen. (a-c) Die Bildqualität der REM-Bilder ist aufgrund der Oberflächenaufladung des Diamanten nach Entfernung der leitenden Chromschicht herabgesetzt. Um eine Aufladung möglichst zu unterbinden wurde die Beschleunigungsspannung der Elektronen der REM-Einheit auf 20 kV gesetzt, sodass die Mehrheit der Elektronen durch die Membran transmittiert wird und sich daher nicht auf der Probenoberfläche anlagern kann. Dies verursacht jedoch einen wenn auch geringen Effekt der Durchsichtigkeit des Diamantfilms in der gekippten Ansicht (a). Alle eingezeichneten Maßstabsleisten entsprechen einer Länge von $2\ \mu\text{m}$. (a und b) Der Resonator wurde in einem defektfreien Teil der Diamantmembran hergestellt. Kein Einsinken ist zu erkennen. Die Löcher weisen scharf begrenzte Kanten auf. (c) Querschnitt durch das periodische Lochmuster einer photonischen Kristallstruktur. Auch hier ist kein Einsinken zu beobachten. Die Steilheit der Lochseitenwände wurde erfolgreich erhöht, der Inklinationwinkel beträgt lediglich 4° . Die Platinschicht wird aus technischen Gründen für den FIB-Querschnitt benötigt. (d) Photolumineszenzmessung bei Raumtemperatur. Die Fundamentalmode des besten M3-Resonators weist eine Halbwertsbreite von $\Delta\lambda = 0,740$ nm bei einer spektralen Position von $\lambda = 645,0$ nm mit einem resultierenden Gütefaktor von $Q = 870 \pm 20$ auf. Das Spektrum wurde mit einer Integrationszeit von 30 s bei einer Laserleistung von $500\ \mu\text{W}$ bei 532 nm aufgenommen.

auf $Q_{\text{theo}} = 1800$. In einem nächsten Schritt wurde das REM-Bild der gefertigten Struktur mit dem theoretischen Lochmuster überlagert und Loch für Loch die Abweichung von der intendierten Position manuell ausgemessen. Werden zusätzlich diese Abweichungen in der Simulation berücksichtigt, so ergibt sich für den M3-Resonator ein Gütefaktor von lediglich $Q_{\text{theo}} = 950$.

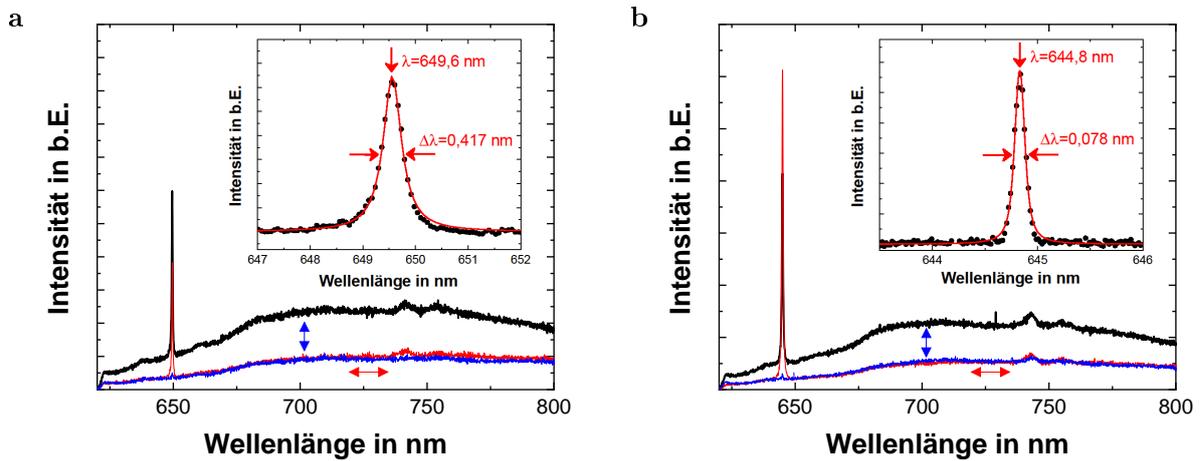


Abbildung 6.9: Photolumineszenzspektren zweier M0-Resonatoren. Die rote und die blaue Kurve stellen zusätzlich aufgenommene Spektren mit einem Polarisationsfilter im Strahlengang dar. Bei Polarisatorstellung in Richtung der Resonatorachse (rot) werden o -Moden unterdrückt, bei orthogonaler Ausrichtung (blau) e -Moden. Somit lässt sich die Fundamentalmode des M0-Resonators auch im Experiment eindeutig als e -Mode identifizieren. Die an die Moden angepassten Lorentzkurven weisen Halbwertsbreiten von (a) $\Delta\lambda = 0,417$ nm mit einem resultierenden Gütefaktor von $Q = 1560 \pm 25$ bzw. (b) $\Delta\lambda = 0,078$ nm mit einem resultierenden Gütefaktor von $Q = 8250 \pm 80$ auf. Die Spektren wurden jeweils mit einer Integrationszeit von 60 s bei einer Laserleistung von 1 mW bei 532 nm aufgenommen.

Dieser für die Fundamentalmode theoretisch vorhergesagte Wert stimmt mit dem experimentell bestimmten Gütefaktor von $Q_{\text{exp}} = 870$ sehr gut überein. Als Hauptursache für die Abweichung der experimentell erzielten Gütefaktoren von den simulierten Werten kann somit die verbliebene Kegelform der Löcher angesehen werden, wohingegen die beobachteten Abweichungen in den Gütefaktoren zwischen den individuellen Resonatoren eines Typs größtenteils den verbliebenen Variationen in den Lochpositionen zugeschrieben werden können.

6.4 Zusammenfassung und Ausblick

Im vorliegenden Kapitel wurde zunächst die Herstellung dünner freistehender Diamantmembranen für die FIB-Strukturierung von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen dargelegt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Probensysteme umgesetzt: Ein hybrides System bestehend aus einem Diamantfilm, der auf ein mit Fenstern vorstrukturiertes Siliziumsubstrat mittels einer wenige Nanometer dünnen HSQ-Schicht befestigt wurde, sowie ein Volldiamantsystem. Beide diskutierten Probensysteme erfüllen die in dieser Arbeit an sie gestellten Anforderungen: In beiden Systemen konnte unter anderem der gleiche hochreine Diamant als kommerziell erhältliches Ausgangsmaterial eingesetzt werden, der im anschließenden RIE-Prozess zu einer wenige hundert Nanometer dicken freistehenden Diamantmembran weiterverarbeitet wurde. Die dargelegten Charakterisierungsmethoden erlaubten

anschließend sowohl lokale Defekte als auch Variationen in der Schichtdicke der dünnen Diamantfilme mit einer hohen Genauigkeit von wenigen Nanometern zu detektieren. Basierend auf diesen Erkenntnissen konnten defektfreie Regionen gleichmäßiger und vor allem passender Schichtdicke zuverlässig ausgewählt werden, in denen zweidimensionale photonische Kristallstrukturen reproduzierbar hergestellt werden konnten. Zu betonen ist, dass die Diamantmembranen aufgrund der umgesetzten Charakterisierungsmethodik problemlos so genutzt werden konnten, wie sie nach dem Herstellungsprozess vorlagen, trotz vereinzelt vorhandener lokaler Defekte oder auch Variationen in der Schichtdicke.

Darüber hinaus wurden in diesem Kapitel Optimierungen der FIB-Strukturierung der Resonatoren beschrieben. Dadurch konnten durch den FIB-Prozess bedingte Fabrikationsabweichungen wie etwa die konische Form der Seitenwände der prozessierten Luftzylinder oder auch Variationen in den Lochpositionen und Lochdurchmessern drastisch verringert und ein Einsinken der Nanostrukturen sogar vollständig unterbunden werden. Es ist anzunehmen, dass weitere Optimierungsversuche der FIB-Strukturierung von photonischen Kristallstrukturen höchstwahrscheinlich nicht mehr zielführend sind, die Möglichkeiten der FIB-Prozessierung sind durch die beschriebenen Optimierungen bis zum Limit ausgereizt. Darüber hinaus konnten durch Nachbehandlungsmethoden wie das Ausheizen bei Temperaturen von 1000 °C oder auch das Reinigen in geeigneten Säurebädern implantierte Galliumionen erfolgreich entfernt und eine gute Kristallqualität des durch die FIB-Strukturierung geschädigten Diamanten wieder hergestellt werden. Die Ausbeute an Resonatoren mit Nachweis von Moden beträgt aufgrund des optimierten Herstellungsprozesses der Nanostrukturen sowie der dargelegten Charakterisierungsmethoden der Membranen 95 %. Die erzielten Gütefaktoren der Resonatormoden liegen mit bis zu $Q = 8250$ im Bereich der aktuell auch durch RIE-Prozessierung erreichbaren Gütefaktoren der Moden von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen mit kleinen Modenvolumina (in der Größenordnung einer kubischen Wellenlänge) und einer spektralen Modenposition in der Nähe der Nullphononenlinie von NV-Zentren [81, 85, 219].

Die zukünftige Anwendung von reaktivem Ionenätzen zur Herstellung der photonischen Kristallstrukturen in den charakterisierten Membranen könnte die verbliebenen, hauptsächlich der FIB-Prozessierung zugeschriebenen Fabrikationsabweichungen und Limitierungen weiter reduzieren. Könnte etwa der Inklinationswinkel der Seitenwände der Luftzylinder dadurch von 4° auf 2° verringert werden, so würde sich der erzielte Gütefaktor der Resonatormoden mehr als verdoppeln. Anzumerken ist hierbei, dass jedoch selbst bei geätzten Nanostrukturen typischerweise keine perfekt senkrechten Seitenwände der Luftzylinder erreichbar sind [246, 253]. Auch die Schwankungen in den Lochpositionen könnten durch eine RIE-Prozessierung weiter reduziert werden, etwa durch Verwendung einer Hartmaske aus Silizium [85, 219]. Ein entscheidendes Limit bei der FIB-Strukturierung stellt des Weiteren die Einschränkung auf die zuverlässige Herstellung von maximal 200 Luftzylindern pro photonischer Kristallstruktur dar. Diese Limitierung wird in RIE-Prozessen bei Wahl einer geeigneten Maskierung der Probe obsolet. Wird bei einem M3 oder M7-Resonator die Anzahl der umgebenden Löcher von 200 auf beispielsweise 500 erhöht, so sind die Resonatoren statt von 6 von 10 Lochreihen umgeben. Die simulierten Gütefaktoren verfünffachen sich dadurch und sind nur noch durch vertikale Abstrahlungsverluste limitiert,

$Q \approx Q_{\perp}$. Derart erhöhte Gütefaktoren könnten zukünftig etwa die Realisierung von integrierten Strukturen aus an Wellenleiter gekoppelten Resonatormoden als Plattform für weitere quantenphysikalische Anwendungen ermöglichen [80]. Eine Erhöhung der Gütefaktoren etwa durch eine RIE-Prozessierung wäre zumindest für M3 und M7-Resonatoren hierfür unumgänglich.

Sowohl das hybride Probensystem als auch das Volldiamantsystem können im Vakuum auf Temperaturen von 1000 °C erhitzt werden. Diese Temperaturrestistenz ist, wie im weiteren Verlauf der Arbeit noch relevant sein wird, nicht nur für die Wiederherstellung einer guten Kristallqualität, sondern auch für die Aktivierung von darin implantiertem Stickstoff zu NV-Zentren erforderlich (Kapitel 8). Darüber hinaus weisen die beiden Systeme individuelle, für das jeweilige Probensystem charakteristische Stärken auf. So zeichnet sich die Anordnung von Diamant auf einem Siliziumsubstrat durch ihre außerordentlich gute Stabilität und Handhabbarkeit aus. Der Unterbau aus Silizium kann etwa problemlos im Kryostaten oder in anderen Geräten festgeklemmt werden, ohne den aufgebrauchten Diamanten zu tangieren oder gar zu beschädigen. Des Weiteren kann die Probe daher auch problemlos mithilfe einer herkömmlichen Pinzette in Säurebäder eingebracht und wieder geborgen werden. Das Volldiamantsystem hingegen ist aufgrund seiner Dicke von lediglich 20 µm fragiler und anspruchsvoller zu handhaben. Ein Angreifen mit einer herkömmlichen Pinzette ist nahezu unmöglich, eine Handhabung mithilfe einer Vakuumpinzette mit minimalem Unterdruck erforderlich. Dafür ist die noch höhere thermische Resistenz des Volldiamantsystems ein Pluspunkt für zukünftige Einsatzmöglichkeiten. Während für die Aktivierung von NV-Zentren oder SiV-Zentren ein Erhitzen auf Temperaturen von 800 °C ausreichend ist, sollten beispielsweise mit Zinn implantierte Proben bei 2000 °C ausgeheizt werden, um SnV-Zentren mit bestmöglichen optischen Eigenschaften zu erzeugen [142]. Das Volldiamantsystem ist zumindest bei geeigneten Drücken gegenüber derartigen Temperaturen resistent, ein Substrat aus Silizium beginnt hingegen bereits bei deutlich niedrigeren Temperaturen zu schmelzen.

Im Rahmen der Reinraumtätigkeit zur Nanofabrikation der Proben ist es ferner gelungen, die in einem Volldiamantsystem gefertigten Membranen aus ihrem Diamantrahmen herauszubrechen und auf ein beliebiges Substrat zu transferieren. In Zukunft könnte daher eine Membran mit Resonatoren oder auch Wellenleitern in photonischen Kristallstrukturen nach Fertigung und Implantation von Farbzentren in ein komplexeres System aus mehreren angeordneten Membranen integriert werden. Konkret könnte beispielsweise ein vielversprechendes Zweischichtsystem realisiert werden, in dem zwei Diamantfilme mit photonischen Kristallstrukturen in einem gewissen Abstand übereinander angeordnet werden und zwei abgestimmte Resonatoren unter Umständen sogar über eine optomechanische Kopplung miteinander kommunizieren [254]. Neben der Eignung als Plattform für photonische Kristallstrukturen könnten die hergestellten und mit inkorporierten Farbzentren versehenen Diamantfilme in Zukunft nach Herausbrechen aus dem Diamantrahmen ebenso in optische Antennen integriert werden [255].

Das Volldiamantsystem wird aufgrund der angesprochenen Stärken trotz der anspruchsvolleren Handhabbarkeit in Zukunft an Relevanz gewinnen, gerade wenn die Inkorporation von SnV-Zentren in Erwägung gezogen wird. Da dieses System jedoch erst gegen Ende der Dauer der Forschungstätigkeit soweit entwickelt war, dass eine zuverlässige Herstellung der Membranen in der gewünschten Qualität realisiert werden konnte, wurden die in den folgenden Kapiteln

beschriebenen Experimente mit dem für unsere Anforderungen gleich gut geeigneten hybriden Probensystem als Plattform für photonische Kristallstrukturen durchgeführt.

7 Abstrahlung von Licht aus photonischen Strukturen

Koppelt das Licht eines Quantenemitters an eine Mode eines Resonators in einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur, so werden die emittierten Photonen in lateraler Richtung aufgrund der periodischen Anordnung der Luftzylinder und zusätzlich in vertikaler Richtung aufgrund der Totalreflexion an der Grenzfläche Diamant/Luft geführt. Die Moden der in den vorangegangenen Kapiteln simulierten, hergestellten und analysierten Resonatoren zeigen dabei neben einer sehr guten räumlichen Lokalisierung, quantifiziert durch ein sehr kleines Modenvolumen V ferner eine gute zeitliche Führung des Lichts, quantifiziert durch einen hohen Gütefaktor Q . Ein an eine derartige Resonatormode gekoppelter Quantenemitter erfährt im hier vorliegenden Purcell-Regime eine Erhöhung der spontanen Emissionsrate, quantifiziert durch den Purcell-Faktor F . Für weitere quantenphysikalische Anwendungen ist jedoch nicht nur die Erhöhung der spontanen Emissionsrate sowie die Führung von Licht in einer Resonatormode von Bedeutung, sondern auch die Abstrahlcharakteristik des aus der photonischen Nanostruktur emittierten Lichts, die das effektive Aufsammeln der emittierten Photonen durch ein vertikal über der Diamantmembran positioniertes Objektiv maßgeblich beeinflusst.

In diesem Kapitel wird die Untersuchung der Abstrahlung von Licht aus Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen dargelegt. Dazu wird im Folgenden zunächst die Simulationstechnik eingeführt, die unter anderem durch die Implementierung breitbandiger Dipolemitter die Modellierung der Lichtemission eines im Resonator platzierten NV-Zentrums ermöglicht. Zentrale Kenngrößen der Auskopplung von Licht aus den photonischen Strukturen werden ermittelt. Es wird gezeigt, dass die Sammeleffizienz ein resonatorspezifisches und wellenlängenabhängiges Verhalten zeigt, das durch die Nanostrukturen insbesondere bei den Resonanzwellenlängen der Moden im Vergleich zu anderen Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke stark modifiziert wird. Dieses Verhalten wird durch eine detaillierte Analyse der Abstrahlcharakteristik unter Berücksichtigung weiterer Größen, wie etwa der Intensitätsverteilung im Fernfeld, vollständig erklärt werden. Anschließend Simulationen bei Implementierung eines erweiterten Probensystems, bei dem unterhalb der Diamantmembran zusätzlich ein Goldspiegel positioniert ist, liefern einen vom Resonatortyp abhängigen optimalen Abstand zwischen Diamantoberfläche und Goldspiegel, bei dem die Sammeleffizienz global gesteigert werden kann. Im Anschluss daran wird die Herstellung eines derartigen durch Hinzufügen eines Goldspiegels hinsichtlich der Sammeleffizienz optimierten Probensystems vorgestellt. Entwickelte Nanofabrikationstechniken wie etwa ein Gold-Gold-Verbindungsprozess erlauben hierbei eine feste Verbindung sowie die Gewährleistung des optimalen Abstands zwischen Diamantmembran und Goldschicht.

7.1 Simulationsmethodik

Um die Simulationsmethodik möglichst anschaulich einzuführen zu können, wird sich in diesem Abschnitt zunächst auf die Untersuchung der Abstrahlung von Licht eines in einer noch unstrukturierten Diamantmembran inkorporierten Quantenemitters beschränkt. Der im Folgenden beschriebene Aufbau der Simulationszelle im FDTD-Programm Lumerical sowie die im Folgenden dargelegten Berechnungsmethoden, etwa zur Bestimmung der Fernfeldverteilungen oder der Sammeleffizienz, werden im weiteren Verlauf des Kapitels auch auf die Untersuchung der Abstrahlung von Licht aus Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen adaptiert werden. Die allgemeinen theoretischen Grundlagen zur FDTD-Methodik, wie etwa die Berechnung der einzelnen Feldkomponenten in einem Yee-Gitter, wurden bereits in Kapitel 4 erläutert und werden hier nicht erneut thematisiert.

Die Simulationszelle weist für alle Simulationen in diesem Kapitel eine Größe von $6\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m} \times 6\ \mu\text{m}$ auf und ist in Abbildung 7.1a vereinfacht dargestellt. Das Simulationsgebiet ist von einer 32 Simulationspixel dicken PML-Schicht umgeben, die die elektromagnetischen Felder am Rande der Simulationszelle sanft abklingen lässt und somit störende Reflexionen unterbindet. Ein Quantenemitter, bei dem es sich beispielsweise um ein NV-Zentrum handeln könnte, wird durch eine punktförmige Quelle in der Mitte einer 230 nm dicken Diamantmembran modelliert. Die Simulationen werden für einen elektrischen Dipol als Punktquelle mit Orientierung der Dipolachse innerhalb der Membranebene in x -Richtung (E_x) oder in y -Richtung (E_y) sowie vertikal zur Membranebene in z -Richtung (E_z) separat durchgeführt. Aus den für diese drei orthogonalen Dipolorientierungen gewonnenen Simulationsergebnissen können im Nachhinein auch die für die Auskopplung von Licht relevanten Kenngrößen für weitere mögliche Orientierungen eines Dipolemitters errechnet werden, wie im weiteren Verlauf des Kapitels noch exemplarisch im Rahmen der Untersuchung der Auskopplung von Licht aus einem M7-Resonator ausgeführt werden wird. Ferner können bei Wahl genau dieser orthogonalen Dipolorientierungen die geraden Moden der im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Resonatortypen mit einem E_y -Dipol und die ungeraden Moden mit einem E_x -Dipol gezielt adressiert werden.

Die numerische Auflösung wird mit 22 Simulationspixeln pro Wellenlänge gewählt. Da die Wellenlänge vom Brechungsindex des Mediums abhängt, ist auch die absolute Pixelgröße materialabhängig. Bei einer Wellenlänge von beispielsweise 637 nm beträgt die Pixelgröße in Luft 28 nm/Pixel, in Diamant hingegen 12 nm/Pixel. Diese Auflösung ist für die Simulation einer 230 nm dicken Diamantmembran als vollkommen hinreichend anzusehen, bereitet jedoch bei den später simulierten kreisrunden Luftzylindern der photonischen Kristallstrukturen mit Radien in der Größenordnung von etwa 70 nm Probleme. Um dennoch bei der gewählten Auflösung die runden Kanten der Luftzylinder angemessen modellieren zu können, wird in Lumerical das Simulationsgitter an den Übergängen zwischen zwei Materialien zusätzlich verfeinert.

Um Informationen über die Auskopplung von Licht aus dem Diamantfilm zu erhalten, werden um den Emitter herum Energieflussmonitore positioniert. Die vier in Abbildung 7.1a in grün eingezeichneten Monitore detektieren den Energiefluss innerhalb der Diamantmembran (zwei in der xz -Ebene und zwei in der yz -Ebene), die fünf rot markierten Monitore den Energiefluss in

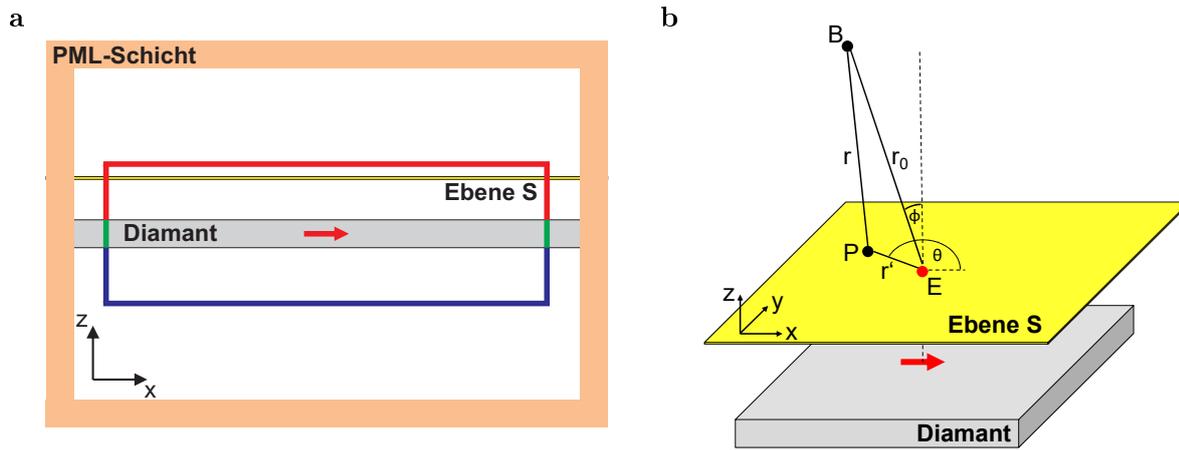


Abbildung 7.1: Simulation eines Emitters in einer Diamantmembran. (a) In der Mitte eines 230 nm dicken, von Luft umgebenen Diamantfilms ist ein Dipolemitter als Quelle verortet, hier exemplarisch in x -Richtung orientiert (E_x -Dipol). Fünf rote Energieflussmonitore messen den Energiefluss in die Raumelemente des oberen Halbraums, vier grüne Monitore den Energiefluss innerhalb der Membran und fünf blaue Monitore den Energiefluss in die Raumelemente des unteren Halbraums. Die Monitore der Vorderseite und Rückseite sind in der zweidimensionalen Skizze nicht eingezeichnet. (b) Geometrische Veranschaulichung zur Berechnung des elektromagnetischen Feldes an einem weit entfernten Beobachtungspunkt B (Fernfeld) aus dem Feld in einer künstlichen Ebene S parallel zur Diamantmembran (Nahfeld). Das Nahfeld wird in der künstlichen Ebene S mithilfe einer FDTD-Simulation bestimmt und die Intensitätsdichte pro Raumwinkelelement aus den Fouriertransformierten der Nahfeldkomponenten berechnet.

den Halbraum oberhalb der Diamantmembran (zwei in der xz -Ebene, zwei in der yz -Ebene und einer in der xy -Ebene) und analog die fünf blau eingezeichneten Monitore den Energiefluss in den Halbraum unterhalb der Diamantmembran. Ferner wird die gesamte vom Emitter während der Simulationsdauer abgestrahlte Energiemenge ermittelt, sowie zu Normierungszwecken zusätzlich die Energiemenge, die der gleiche Emitter in einem homogenen Medium (Volldiamant) emittieren würde. Mithilfe dieser erhobenen Daten kann im Anschluss an die Simulationen beispielsweise der Emissionsanteil in den Halbraum oberhalb der Diamantmembran ermittelt werden.

Bei den im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten konfokalen Mikroskopen ist ein vertikal zur Probenoberfläche orientiertes Objektiv oberhalb der Diamantmembran positioniert, um das von einem Quantenemitter emittierte Licht aufzusammeln (siehe Kapitel 5). Aufgrund der gewählten Positionierung des Objektivs gehen die in den unteren Halbraum abgestrahlten sowie die in der Diamantmembran geführten Photonen prinzipiell verloren. Aber selbst von den Photonen, die in den Halbraum oberhalb der Diamantmembran gelangen, können aufgrund der numerischen Apertur des verwendeten Objektivs von 0,8 nur diejenigen aufgesammelt werden, die das Objektiv unter Polarwinkeln $\phi \leq \alpha = 53,13^\circ$ erreichen. Um vorhersagen zu können, welcher Anteil des emittierten Lichts von einem Objektiv aufgesammelt werden kann, muss folglich die räumliche Intensitätsverteilung des elektromagnetischen Feldes am Ort des Objektivs, also weit entfernt von der Lichtquelle bestimmt werden. Weit entfernt bedeutet hier, dass der Abstand r_0 des Be-

obachtungspunktes von der Lichtquelle wesentlich größer ist als die Wellenlänge des emittierten Lichts ($r_0 \gg \lambda$), wie für ein herkömmliches Objektiv aufgrund des Arbeitsabstands von hier beispielsweise 1,6 mm stets erfüllt ist. Das im Beobachtungspunkt vorliegende elektromagnetische Feld wird in diesem Falle als das *Fernfeld* des Emitters bezeichnet. Die Feldverteilung in der Nähe der Lichtquelle (r_0 höchstens in der Größenordnung von λ) wird folglich als das *Nahfeld* des Emitters bezeichnet.

7.1.1 Berechnung von Fernfeldern

Die Vergrößerung des Simulationsvolumens derart, dass Fernfelder an einem weit entfernten Beobachtungspunkt B im Abstand $r_0 \gg \lambda$ direkt simuliert werden können, ist aufgrund von Beschränkungen in den Fähigkeiten heutiger Simulationsrechner nicht möglich und insbesondere durch die Größe des verfügbaren Arbeitsspeichers limitiert. Alternativ werden in diesem Kapitel nach Vučković et al. [256] die Fernfelder durch eine geeignete Transformation der Nahfelder bestimmt. Dazu werden zunächst mithilfe einer FDTD-Simulation in Lumerical die Nahfelder in einer künstlichen Ebene S numerisch ermittelt. Diese Ebene befindet sich wie in Abbildung 7.1 dargestellt im oberen Halbraum und ist parallel zur Diamantmembran orientiert. Nach dem Huygensschen Prinzip kann jede Wellenfront der Nahfeldverteilung als Erregerzentrum einer Elementarwelle aufgefasst werden. Diese Elementarwellen überlagern sich jeweils und die Einhüllenden bilden die neuen Wellenfronten. Somit können prinzipiell auch die Wellenfronten in einiger Entfernung von der bekannten Nahfeldverteilung, also insbesondere auch in einem weit entfernten Beobachtungspunkt B , rein aus der vorliegenden Nahfeldverteilung ermittelt werden. Die äquivalenten Quellen, die nach dem Huygensschen Prinzip als Erregerzentren der Elementarwellen fungieren, können durch die magnetischen Oberflächenströme \vec{M}_S und elektrischen Oberflächenströme \vec{J}_S in der künstlichen Ebene S wie folgt ausgedrückt werden [256]:

$$\vec{M}_S = -\hat{n} \times \vec{E} = \hat{x}E_y - \hat{y}E_x \quad (7.1)$$

$$\vec{J}_S = \hat{n} \times \vec{H} = -\hat{x}H_y + \hat{y}H_x . \quad (7.2)$$

Der Vektor \hat{n} ist dabei der Normalenvektor zur Ebene S , \vec{E} und \vec{H} die elektrische bzw. magnetische Feldstärke. Diese aus den Nahfeldkomponenten berechneten Oberflächenströme ermöglichen die Einführung von zwei Potenzialen:

$$\vec{A} = \mu_0 \int_S \frac{\vec{J}_S e^{-ikr}}{4\pi r} dS \quad (7.3)$$

$$\vec{F} = \varepsilon_0 \int_S \frac{\vec{M}_S e^{-ikr}}{4\pi r} dS \quad (7.4)$$

mit der Wellenzahl $k = 2\pi/\lambda$ und dem Abstand r zwischen dem Beobachtungspunkt B und einem Oberflächenelement dS am Ort P auf der Oberfläche S , wie in Abbildung 7.1b dargestellt ist. Aus der Skizze kann ferner abgeleitet werden, dass der Abstand r als $r \approx r_0 - r' \cos(\psi)$ mit $\psi = 90^\circ - \phi$ umgeschrieben werden kann. Die beiden eingeführten Potenziale A und F ergeben

sich damit zu:

$$\vec{A} = \mu_0 \frac{e^{-ikr_0}}{4\pi r_0} \vec{N}, \quad \text{mit } \vec{N} = \int_S \vec{J}_S e^{ikr' \cos(\psi)} dS \quad (7.5)$$

$$\vec{F} = \varepsilon_0 \frac{e^{-ikr_0}}{4\pi r_0} \vec{L}, \quad \text{mit } \vec{L} = \int_S \vec{M}_S e^{ikr' \cos(\psi)} dS. \quad (7.6)$$

Die Strahlungsvektoren \vec{N} und \vec{L} sind somit die zweidimensionalen Fouriertransformationen der Oberflächenströme \vec{J}_S und \vec{M}_S ausgewertet für den Wellenvektor $\vec{k}_{\parallel} = k \cdot (x/r_0 \cdot \hat{x} + y/r_0 \cdot \hat{y})$ in kartesischen Koordinaten bzw. $\vec{k}_{\parallel} = k \cdot \sin(\theta) \cdot (\cos(\phi) \cdot \hat{x} + \sin(\phi) \cdot \hat{y})$ in Kugelkoordinaten. Die Komponenten der Strahlungsvektoren \vec{N} und \vec{L} können folglich jeweils auch als zweidimensionale Fouriertransformationen der Feldkomponenten des Nahfelds in der künstlichen Ebene S ausgedrückt werden:

$$N_x = -FT_2(H_y) |_{\vec{k}_{\parallel}} \quad (7.7)$$

$$L_x = FT_2(E_y) |_{\vec{k}_{\parallel}} \quad (7.9)$$

$$N_y = FT_2(H_x) |_{\vec{k}_{\parallel}} \quad (7.8)$$

$$L_y = -FT_2(E_x) |_{\vec{k}_{\parallel}}. \quad (7.10)$$

Die Strahlungsvektoren \vec{N} und \vec{L} werden vollständig durch die Fourierkomponenten der Nahfelder innerhalb des Lichtkegels bestimmt, da der eingeführte Wellenvektor k_{\parallel} stets innerhalb des Lichtkegels liegt ($k_{\parallel} \leq k = 2\pi/\lambda$). Mithilfe der eingeführten Potentiale \vec{A} und \vec{F} können die Fernfelder an einem weit entfernten Beobachtungspunkt B wie folgt dargestellt werden:

$$\vec{E}_{\text{Fern}} = -i\omega\vec{A} - \frac{i\omega}{k^2} \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{A}) - \frac{1}{\varepsilon_0} \vec{\nabla} \times \vec{F} \quad (7.11)$$

$$\vec{H}_{\text{Fern}} = -i\omega\vec{F} - \frac{i\omega}{k^2} \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{F}) - \frac{1}{\mu_0} \vec{\nabla} \times \vec{A}. \quad (7.12)$$

Wird angenommen, dass alle Terme in den elektromagnetischen Feldern, die schneller als $1/r_0$ abklingen und somit nur einen geringeren Beitrag zum Fernfeld am Beobachtungspunkt B im Abstand r_0 liefern vernachlässigt werden können, so ergeben sich die Fernfeldkomponenten am Beobachtungspunkt B in Kugelkoordinaten (r_0, θ, ϕ) mit $\eta = \sqrt{\mu_0/\varepsilon_0}$ zu:

$$E_{\theta, \text{Fern}} = \eta \cdot H_{\phi, \text{Fern}} = -i \frac{e^{-ikr_0}}{2\lambda r_0} (\eta N_{\theta} + L_{\phi}) \quad (7.13)$$

$$E_{\phi, \text{Fern}} = -\eta \cdot H_{\theta, \text{Fern}} = i \frac{e^{-ikr_0}}{2\lambda r_0} (-\eta N_{\phi} + L_{\theta}) \quad (7.14)$$

$$E_{r, \text{Fern}} = \eta \cdot H_{r, \text{Fern}} = 0. \quad (7.15)$$

Für die Umrechnung der Fouriertransformierten der magnetischen Nahfeldkomponenten zwischen kartesischen Koordinaten und Kugelkoordinaten gilt dabei:

$$N_{\theta} = (N_x \cos(\phi) + N_y \sin(\phi)) \cdot \cos(\theta) \quad (7.16)$$

$$N_{\phi} = -N_x \sin(\phi) + N_y \cos(\phi). \quad (7.17)$$

Somit können mithilfe der erarbeiteten Beziehungen die Komponenten des Fernfelds in einem beliebigen, weit entfernten Beobachtungspunkt B aus den Feldkomponenten des Nahfelds, simuliert in einer künstlichen Ebene S parallel zur Probenoberfläche, analytisch berechnet werden. Ist hingegen gefragt, welcher Anteil der in den oberen Halbraum abgestrahlten Energie von einem Objektiv aufgesammelt werden kann, so ist die Strahlungsintensität I (Leistung pro Winkelement) von Interesse. Diese kann ebenso aus den eingeführten Fouriertransformierten der Nahfeldkomponenten über folgende Beziehung errechnet werden [257]:

$$I(\theta, \phi) = \frac{\eta}{8\lambda^2} \left(\left| N_\theta + \frac{L_\phi}{\eta} \right|^2 + \left| N_\phi - \frac{L_\theta}{\eta} \right|^2 \right). \quad (7.18)$$

Mithilfe dieser Strahlungsintensität gelingt es schließlich, die gesamte Leistung P_α zu berechnen, die in den Raumbereich mit Polarwinkeln $\phi \leq \alpha$ mit beispielsweise $\alpha = 53,13^\circ$ für ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 emittiert wird:

$$P_\alpha = \int_0^{\alpha \cdot 2\pi/360^\circ} \int_0^{2\pi} I(\theta, \phi) \sin(\theta) \, d\theta d\phi. \quad (7.19)$$

7.1.2 Abstrahlung von Licht aus einer Diamantmembran

In diesem Abschnitt wird die Untersuchung der Abstrahlung von Licht aus einer Diamantmembran sowie das Aufsammeln des abgestrahlten Lichts mit einem vertikal über der Diamantoberfläche positionierten Objektiv dargelegt. Als Quelle elektromagnetischer Wellen wird ein Dipolemitter in der Mitte der Simulationszelle und somit in der Mitte des 230 nm dicken Diamantfilms positioniert. Um die Emission eines NV-Zentrums möglichst realitätsnah zu modellieren, wird ein breitbandiger Emitter implementiert, der Licht im Wellenlängenbereich von 575 nm bis hin zu 800 nm aussendet. Die breitbandige Quelle wird zu Beginn der Simulationen kurz zu einer erzwungenen elektromagnetischen Dipolschwingung angeregt und klingt anschließend ab. Die Simulationen werden gestoppt, sobald die Energie in der Simulationszelle auf 10^{-4} des Ausgangswertes abgeklungen ist. Dies ermöglicht genaue Simulationsergebnisse bei einer angemessenen Simulationsdauer.

Mithilfe der eingefügten Energiemonitore sowie der künstlichen, parallel zur Diamantmembran orientierten Monitorebene S (Abbildung 7.1) werden neben den Fernfeldverteilungen fünf Kenngrößen der Auskopplung von Licht aus der photonischen Struktur und dem anschließenden Aufsammeln mit einem Objektiv bestimmt, auf die im Folgenden kurz eingegangen wird.

Oberer und unterer Halbraum: Ein in der Diamantmembran positionierter Dipolemitter sende eine elektromagnetische Welle aus. Die Größe *oberer Halbraum* bezeichnet den prozentualen Anteil an den insgesamt emittierten Photonen, die in den Halbraum oberhalb der Diamantmembran abgestrahlt werden. Dieser Anteil wird mithilfe der über die Simulationsdauer aufsummier-

ten Energieflüsse durch die roten Monitore (Abbildung 7.1a), normiert mit der durch den Emitter insgesamt in das System eingebrachten Energiemenge, bestimmt. Analog ist die Größe *unterer Halbraum* festgelegt.

Oberer Halbraum in NA: Das Objektiv ist vertikal zur Probenoberfläche orientiert und oberhalb der Diamantmembran positioniert. Die Größe *oberer Halbraum in NA* gibt den Anteil der durch die Ebene S oberhalb der Diamantmembran transmittierten Photonen an, die im Fernfeld in geeignete Polarwinkel $\phi \leq \alpha$ emittiert werden und somit von einem Objektiv aufgesammelt werden können. Der maximale Polarwinkel α wird durch die numerische Apertur des Objektivs festgelegt. Im Folgenden wird, wie im realen Versuchsaufbau verwendet, ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 und einem damit verbundenen maximalen Polarwinkel von $\alpha = 53,13^\circ$ angenommen.

Sammeleffizienz: Die Größe *Sammeleffizienz* gibt an, wie viele Photonen mit einem Objektiv aufgesammelt werden können, normiert mit der Photonenzahl, die der Emitter während der Dauer der Simulation in der konkreten photonischen Umgebung insgesamt aussendet. Die Sammeleffizienz bezeichnet folglich den prozentualen Anteil an den insgesamt emittierten Photonen, der von einem Objektiv aufgesammelt werden kann. Die Sammeleffizienz kann im Anschluss an die Simulationen berechnet werden, indem die im Fernfeld in Polarwinkeln $\phi \leq \alpha$ detektierte Energiemenge mit der gesamten vom Emitter abgestrahlten Energiemenge normiert wird.

Sammelfaktor: Die Größe *Sammelfaktor* gibt an, wie viele Photonen während der Simulationsdauer mit einem Objektiv aufgesammelt werden können, normiert mit der Photonenzahl, die der Emitter in der gleichen Zeitspanne in einem homogenen Medium (Volldiamant) aussenden würde. Bei dieser physikalischen Größe werden somit sowohl die Anzahl an ausgesendeten Photonen, die wiederum von der Zustandsdichte der konkreten photonischen Umgebung des Emitters abhängt, als auch die Abstrahlcharakteristik und die damit verbundene Intensitätsverteilung im Fernfeld berücksichtigt. Der Sammelfaktor kann im Anschluss an die Simulationen berechnet werden, indem die im Fernfeld in Polarwinkeln $\phi \leq \alpha$ detektierte Energiemenge mit der gesamten abgestrahlten Energiemenge eines in Volldiamant eingebetteten Emitters normiert wird.

Für die Simulation der Diamantmembran wird eine spektrale Auflösung der Monitore von 5 nm im angesprochenen Spektralbereich von 575 nm bis hin zu 800 nm gewählt. Da alle angesprochenen Größen Verhältnisse von Photonenzahlen bzw. Energiemengen darstellen, kann die Emission des Emitters in der Simulation gaußförmig erfolgen, auch wenn dies nicht der Verteilung der spektralen Energiedichte eines NV-Zentrums entspricht.

Die zentralen Ergebnisse der Simulationen sind in Abbildung 7.2 dargestellt. Wie bereits angesprochen wurde, können nur die in den Halbraum oberhalb der Diamantmembran abgestrahlten Photonen potenziell detektiert werden. Von diesen in den oberen Halbraum emittierten und durch die Ebene S transmittierten Photonen werden für einen in der Membranebene orientierten Dipolemitter wellenlängenabhängig zwischen 65 % und 75 % von einem Objektiv mit einer

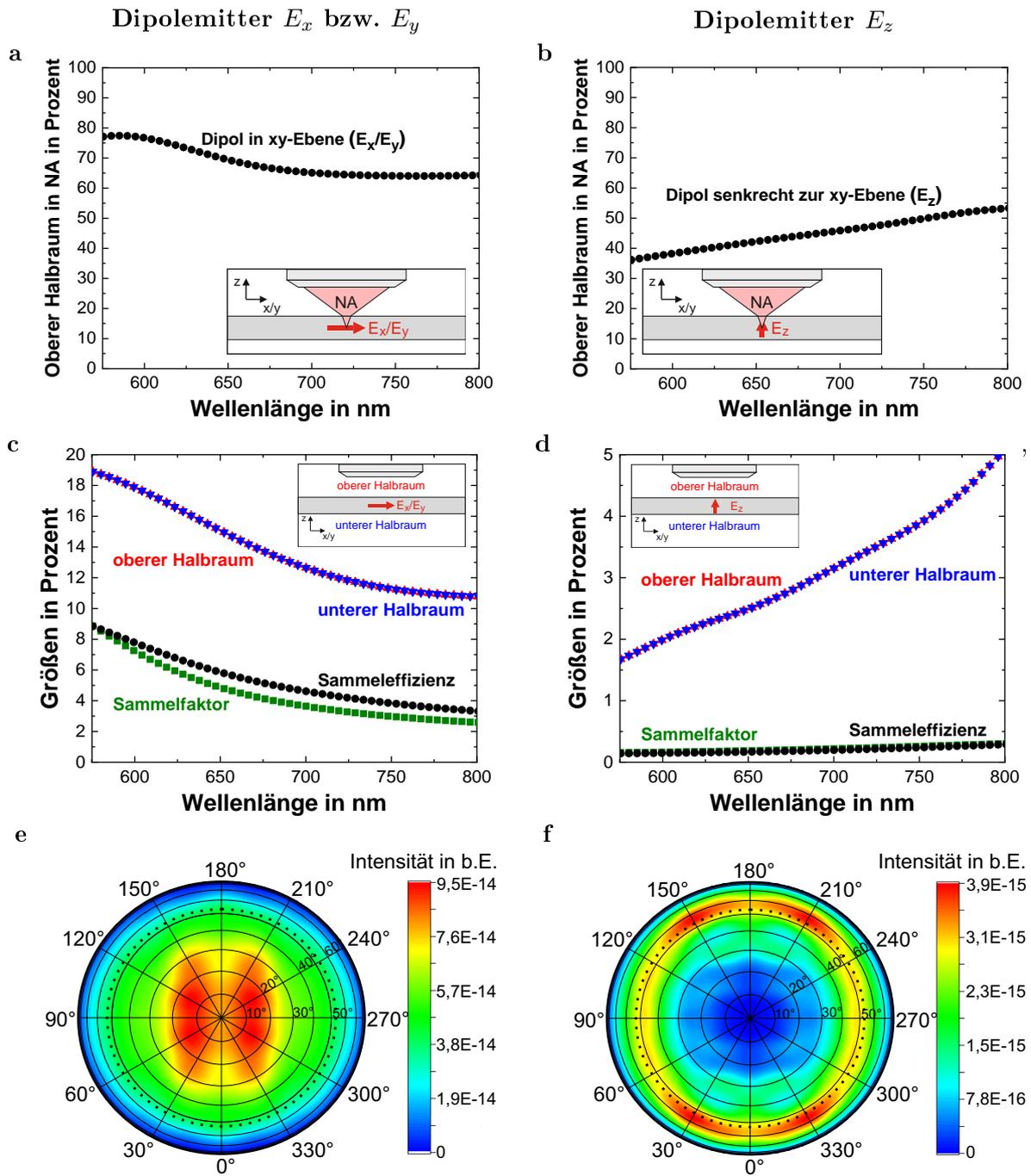


Abbildung 7.2: Simulation der Auskopplung von Licht aus einer Diamantmembran. Die linke Spalte stellt die Simulationsergebnisse für einen in der Membranebene orientierten Dipolemitter (E_x bzw. E_y) und die rechte Spalte für einen vertikal in z -Richtung orientierten Dipolemitter (E_z) dar. (a und b) Anteil des in den oberen Halbraum abgestrahlten Lichts, das von einem vertikal über der Diamantoberfläche positionierten Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann. (c und d) Sammelleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen. (e und f) Fernfeldverteilungen in Abhängigkeit des Azimutwinkels θ von 0° bis 360° sowie des Polarwinkels ϕ von 0° bis 90°, exemplarisch ausgewertet bei einer Wellenlänge von 637 nm. Die gestrichelte Linie stellt den zur numerischen Apertur 0,8 gehörenden maximalen Aufsammelwinkel dar.

numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt (Abbildung 7.2a) und beispielsweise 71 % bei einer Wellenlänge von 637 nm. Für einen in z -Richtung orientierten Dipolemitter liegt dieser Wert hingegen lediglich zwischen 35 % und 55 % (Abbildung 7.2b) und beispielsweise bei 41 % für eine Wellenlänge von 637 nm. Die geringeren Werte für einen senkrecht zur Membranebene orientierten Dipol lassen sich mithilfe der in den Abbildungen 7.2e und 7.2f dargestellten Fernfeldverteilungen erklären. Während bei einem in der xy -Ebene orientierten Dipolemitter der Großteil der Emission in Polarwinkel kleiner als 30° abgestrahlt wird und somit vom Objektiv aufgesammelt werden kann, weist konträr dazu der zugehörige Raumwinkelbereich bei einem in z -Richtung orientierten Dipolemitter kaum Intensität im Fernfeld auf. Ein großer Anteil der Emission konzentriert sich hier auf Polarwinkel größer als $53,13^\circ$, dem maximalen Polarwinkel der Detektion durch ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8.

Wie aufgrund der vorliegenden Spiegelsymmetrie an der xy -Ebene zu erwarten ist, stimmen der Anteil der Emission in den unteren Halbraum und der Anteil der Emission in den oberen Halbraum bei jeder Wellenlänge überein (Abbildung 7.2c und 7.2d). Für einen Dipolemitter in der Membranebene sind die beiden Werte allerdings deutlich größer als für einen vertikal orientierten Dipol. Werden exemplarisch erneut Photonen mit einer Wellenlänge von 637 nm betrachtet, so liegen die Emissionsanteile in den jeweiligen Halbraum für einen in der xy -Ebene orientierten Dipolemitter bei 16 % versus 2,4 % für einen in z -Richtung orientierten Emitter. Derart abweichende Werte sind hier zu erwarten, da ein vertikal zur Diamantmembran orientierter Dipol einen größeren Anteil seiner emittierten Photonen unter flachen Winkeln abstrahlt, sodass das Licht durch Totalreflexion in der dünnen Diamantmembran geführt wird. Daher können für einen in z -Richtung orientierten Dipol etwa 95 % der emittierten Photonen die Diamantmembran nicht verlassen. Ebenso lässt sich auch erklären, dass Sammeleffizienz und Sammelfaktor mit jeweils unter 0,5 % für diese Dipolorientierung deutlich kleinere Werte annehmen als für einen in der xy -Ebene ausgerichteten Dipol mit einer Sammeleffizienz von beispielsweise 6,3 % für Photonen der Wellenlänge 637 nm. Darüber hinaus lässt sich insbesondere bei einem in der xy -Ebene orientierten Dipolemitter erkennen, dass Sammelfaktor und Sammeleffizienz nicht die gleichen Werte aufweisen. Dies lässt darauf schließen, dass die 230 nm dicke Diamantmembran bereits einen Einfluss auf die Emissionsrate des implementierten Dipolemitters hat. Die lokale Zustandsdichte ist im Vergleich zur Zustandsdichte in einem (idealerweise unendlich ausgedehnten) Volldiamanten durch die vorliegende photonische Struktur reduziert.

7.2 Abstrahlung von Licht aus Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen

In diesem Abschnitt wird die Untersuchung der Auskopplung von Licht aus Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen dargelegt. Dazu werden neben den Fernfeldverteilungen erneut die Emissionsanteile in die numerische Apertur, den oberen und unteren Halbraum sowie Sammeleffizienz und Sammelfaktor betrachtet. Zunächst wird auf die Abstrahlung von Licht aus einem M7-Resonator eingegangen. In diesem Rahmen wird auch der Einfluss weiterer Simulati-

onsparameter auf die Ergebnisse thematisiert. Im Anschluss daran erfolgt die Betrachtung der Lichtauskopplung aus einem optimierten M3-Resonator sowie einem optimierten M0-Resonator. In den Simulationen werden die photonischen Kristallstrukturen mit genau der Lochanzahl simuliert, die im Herstellungsprozess realisiert werden konnte. Ferner wird die durch den FIB-Prozess bedingte Kegelform der Löcher mit einem Inklinationwinkel von 4° als dominierende Fabrikationsabweichung (siehe Kapitel 6) berücksichtigt. Die Kegelform der Luftzylinder ist für die Untersuchung der Auskopplung von Licht von besonderer Relevanz, da etwa zu erwarten ist, dass sich aufgrund des dadurch hervorgerufenen Symmetriebruchs die Emissionsanteile in den oberen und den unteren Halbraum unterscheiden, im Gegensatz etwa zu den für eine unstrukturierte Diamantmembran gewonnenen Erkenntnissen. Da die hergestellten photonischen Kristallstrukturen im Experiment derart orientiert werden können, dass die breitere Öffnung der Luftkegel nach oben zeigt, ist für diesen Fall sogar zu erwarten, dass die Emission in den oberen Halbraum größer ist als die Emission in den unteren Halbraum.

Die Größe der Simulationszelle, die gewählte Auflösung und auch die Dicke der PML-Schicht bleiben im Folgenden im Vergleich zur Simulation der unstrukturierten Diamantmembran unverändert. Die Energiemonitore und die Ebene S behalten ihre in Abbildung 7.1a dargestellte Lage in der Simulationszelle bei. Zum Aufsammeln der Emission wird wie gewohnt ein vertikal zur Probenoberfläche orientiertes und oberhalb der Diamantmembran positioniertes Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 angenommen. Des Weiteren werden die Simulationen erneut für die drei orthogonalen Orientierungen eines Dipolemitters in x -Richtung (E_x), in y -Richtung (E_y) sowie in z -Richtung (E_z) separat durchgeführt. Die Quelle modelliert erneut einen breitbandigen Emittor im Wellenbereich von 575 nm bis hin zu 800 nm, der kurz zu einer erzwungenen Schwingung angeregt wird und anschließend abklingt. Die Simulationen stoppen, wenn die Energie in der Simulationszelle auf 10^{-4} des Anfangswertes abgefallen ist. Der Dipolemitter wird jeweils im Feldmaximum der Fundamentalmode des jeweiligen Resonators positioniert.

7.2.1 M7-Resonator

Die photonische Kristallstruktur wird mit einer Gitterkonstante von $a = 211$ nm und einer damit verbundenen Schichtdicke des Diamantfilms von $h = 232$ nm simuliert. Für diese Parameter liegt die Fundamentalmode des M7-Resonators mit 200 umgebenden Luftzylindern und einem angenommenen Inklinationwinkel der Lochseitenwände von 4° bei einer Wellenlänge von 637 nm und somit in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums.

Simulationsergebnisse

Die Simulationsergebnisse sind in den Abbildungen 7.3 und 7.4 dargestellt. Bei Implementierung eines E_y -Dipols als Quelle können im simulierten Wellenlängenbereich die beiden gerade Moden $e1$ und $e2$ angeregt werden. Die $e1$ -Mode ist die Fundamentalmode des Resonators, deren Wellenlänge mit der spektralen Position der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums bei 637 nm übereinstimmt. Die $e2$ -Mode liegt dazu blauverschoben bei 612 nm. Wie in Abbildung 7.3a zu

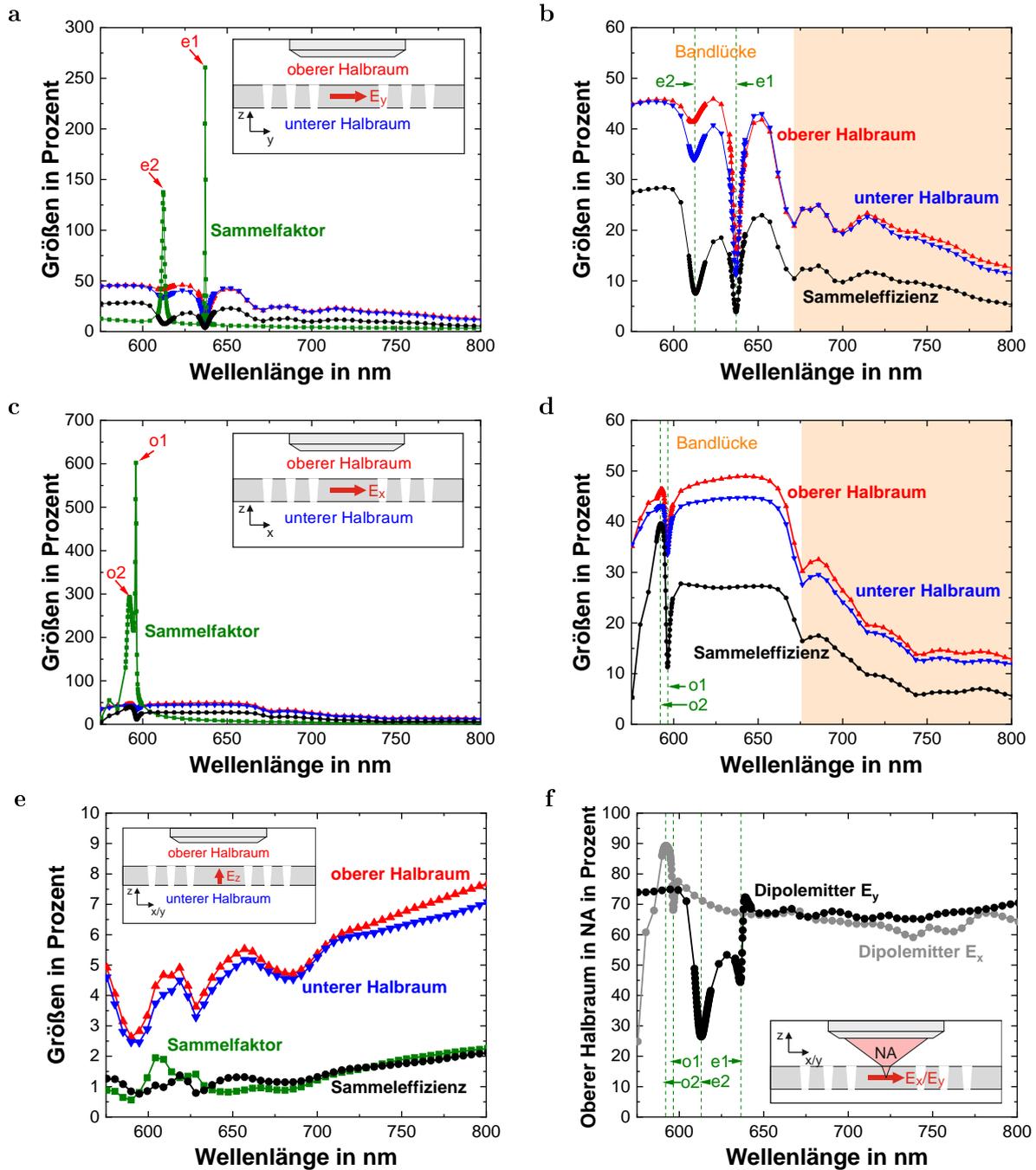


Abbildung 7.3: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M7-Resonator. (a-e) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in x -Richtung (c und d) mit einer Vergrößerung in (d) sowie für einen Dipol in z -Richtung (e). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen. (f) Anteil des durch die Ebene S transmittierten Lichts, das von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann, für einen Dipol in x -Richtung (grau) und y -Richtung (schwarz).

erkennen ist, sind die Sammelfaktoren der beiden Moden stark erhöht, mit Werten von 260 % für die $e1$ -Mode und 140 % für die $e2$ -Mode. Gleichzeitig lässt sich bei den Resonanzwellenlängen der beiden Moden jeweils ein deutlicher Einbruch der Sammeleffizienz erkennen (Abbildung 7.3b). Während die erzielte Sammeleffizienz bei Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke im Allgemeinen etwa 28 % beträgt, bricht der Betrag dieser Größe bei der Resonanzwellenlänge der $e2$ -Mode auf 7,8 % und bei der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode sogar auf 3,9 % ein. Folglich können von den bei diesen Wellenlängen von einem Emitter ausgesendeten Photonen nur sehr wenige durch das oberhalb der Diamantmembran positionierte Objektiv aufgesammelt werden. Der in diesen Spektralbereichen dennoch erzielte hohe Sammelfaktor lässt sich in Einklang mit der reduzierten Sammeleffizienz durch eine massive Erhöhung der lokalen Zustandsdichte bei den Resonanzwellenlängen der beiden geraden Moden erklären.

Bei Implementierung eines E_x -Dipols können im simulierten Wellenlängenbereich die ungeraden Moden $o1$ bei 596 nm sowie $o2$ bei 592 nm angeregt werden (Abbildung 7.3c). Bei der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode liegt ebenfalls ein Einbruch der Sammeleffizienz auf hier 11 % vor, wohingegen die Sammeleffizienz bei Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke sonst etwa 27 % beträgt (Abbildung 7.3d). Da die reduzierte Sammeleffizienz der $o1$ -Mode jedoch immer noch etwa dreimal so groß ist als die der $e1$ -Mode, kann trotz eines geringeren Gütefaktors und einer damit verbundenen geringeren lokalen Zustandsdichte ein höherer Sammelfaktor bei der jeweiligen Resonanzwellenlänge von 600 % für die $o1$ -Mode versus 260 % für die $e1$ -Mode erzielt werden. Diese Simulationsergebnisse erklären somit auch die zuvor bereits jahrelang im Experiment gemachte Beobachtung, dass bei einem M7-Resonator die ungeraden Moden intensitätsstärker im Spektrum hervortreten als die geraden Moden. Es bleibt anzumerken, dass ein derartiger Einbruch der Sammeleffizienz für die $o2$ -Mode nicht vorliegt.

Um die Frage nach der Ursache dieser nur bei bestimmten Moden beobachteten Einbrüche in der Sammeleffizienz zu klären, muss die Emission in die Halbräume sowie die Intensitätsverteilung im Fernfeld genauer betrachtet werden. Die Emission in den oberen Halbraum zeigt für die betroffenen Moden $e1$, $e2$ und $o1$ jeweils einen deutlichen Einbruch bei der zugehörigen Resonanzwellenlänge. Von den emittierten Photonen gelangt folglich bei diesen Wellenlängen ein geringerer Anteil in den oberen Halbraum, für die $e1$ -Mode beispielsweise 16 % statt den sonst innerhalb der photonischen Bandlücke erzielten 43 %. Der geringere Emissionsanteil in den oberen Halbraum kann die Minima in der Sammeleffizienz jedoch nicht vollständig erklären. Wird hingegen zusätzlich der Anteil an durch die oberhalb der Diamantmembran positionierte Ebene S transmittierten Photonen, die von einem Objektiv im Fernfeld aufgesammelt werden können berücksichtigt (Abbildung 7.3f), so sind auch hier deutliche Einbrüche bei den Resonanzwellenlängen der betroffenen Moden zu erkennen. Diese Minima lassen sich wiederum anhand von Fernfeldbildern erklären. In Abbildung 7.4 sind exemplarisch die Intensitätsverteilungen im Fernfeld ausgewertet bei den Resonanzwellenlängen der beiden ungeraden Moden veranschaulicht. Während bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode fast die gesamte Emission in Polarwinkel $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ im Fernfeld erfolgt, weist die Intensitätsverteilung bei der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode zusätzlich signifikante Anteile in Fernfeldbereichen mit größeren Polarwinkeln auf. Folglich zeigt die Transmissionskurve in die numerische Apertur bei der Resonanzwellenlänge der

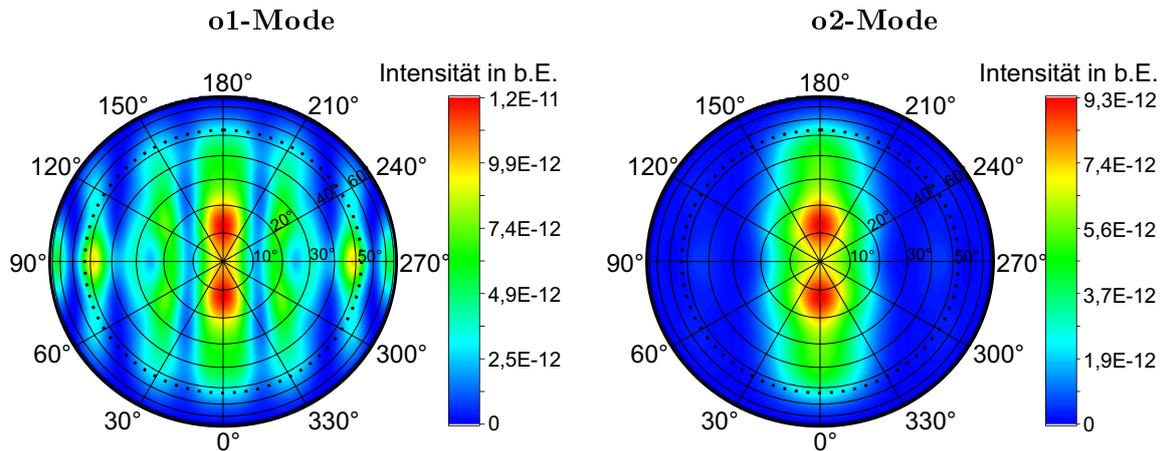


Abbildung 7.4: Fernfeldverteilungen der $o1$ -Mode sowie der $o2$ -Mode eines M7-Resonators in Abhängigkeit des Azimutwinkels θ von 0° bis 360° sowie des Polarwinkels ϕ von 0° bis 90° . Die Intensitätsverteilungen wurden für die jeweilige Resonanzwellenlänge bei $621,4 \text{ nm}$ für die $o1$ -Mode und $617,4 \text{ nm}$ für die $o2$ -Mode ausgewertet. Da die Auswertungen auf Basis der selben Simulation erfolgten, können die angegebenen Intensitäten miteinander verglichen werden. Die gestrichelte Linie stellt den zur numerischen Apertur $0,8$ gehörenden maximalen Aufsammelwinkel dar.

$o1$ -Mode geringere Werte als beispielsweise bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode.

Insgesamt lässt sich die geringere Sammeffizienz bei den Resonanzwellenlängen der $e1$, $e2$ und $o1$ -Mode folglich mit einer veränderten Abstrahlcharakteristik erklären. Es gelangen weniger Photonen in den oberen Halbraum und davon wird zusätzlich auch noch ein geringerer Anteil in für die Detektion mit einem Objektiv geeignete Polarwinkel $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ im Fernfeld emittiert. Bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode liegt hingegen sowohl in der Kurve der Emission in den oberen Halbraum als auch in der Kurve der Transmission in die numerische Apertur des Objektivs kein derartiger Einbruch vor. Die Sammeffizienz nimmt bei dieser Wellenlänge ganz im Gegenteil sogar überdurchschnittlich hohe Werte von über 40% an. Dieser Wert wird von keiner anderen in dieser Arbeit betrachteten Resonatormode erreicht.

Anhand der Simulationsergebnisse lässt sich ferner die zuvor aufgestellte Hypothese bestätigen, dass aufgrund der Kegelform der Löcher und dem damit verbundenen Symmetriebruch die Anteile der Emission in den oberen Halbraum und den unteren Halbraum nicht mehr bei jeder Emissionswellenlänge übereinstimmen. Da die photonische Kristallstruktur in der Simulation so orientiert wurde, dass die breitere Öffnung der Löcher zum Objektiv hin zeigt, ist darüber hinaus der Emissionsanteil in den oberen Halbraum wie vermutet für alle drei Dipolorientierungen im Allgemeinen größer als der Emissionsanteil in den unteren Halbraum.

Wird die Summe der Emissionsanteile in die beiden Halbräume betrachtet, so lässt sich erkennen, dass für einen in der xy -Ebene orientierten Dipolmitter ein hoher Anteil von etwa $80 - 90\%$ der Photonen aus der simulierten Nanostruktur in die Halbräume abgestrahlt wird (Abbildungen 7.3b und 7.3d). Die Abweichung von einem optimalen Anteil von 100% lässt sich durch die Kegelform der Löcher sowie durch die begrenzte Anzahl an hier implementierten und im späteren

FIB-Prozess herstellbaren Löchern erklären. Wird hingegen die $e1$ -Mode betrachtet, so werden bei deren Resonanzzellenlänge trotz photonischer Bandlücke lediglich 25 % der Photonen aus der Diamantmembran ausgekoppelt. Diese auf den ersten Blick unerwartete Erkenntnis lässt sich jedoch erklären, wenn beachtet wird, dass aufgrund der endlichen Schichtdicke statt reiner TE und TM-Moden lediglich TE-ähnliche und TM-ähnliche Moden vorliegen (siehe Kapitel 4). Speziell bei der Resonanzfrequenz der $e1$ -Mode liegt in der Bandstruktur am Rand der Brillouinzone zusätzlich eine TM-ähnliche Mode vor. Die Gruppengeschwindigkeit einer TM-ähnlichen Mode ist an der Bandkante klein [258], daher kann diese TM-ähnliche Mode hier lange an die im Resonator lokalisierte TE-ähnliche $e1$ -Mode koppeln. Da für TM-ähnliche Moden in der umgesetzten photonischen Kristallstruktur keine Bandlücke vorliegt, können in die $e1$ -Mode emittierte Photonen aufgrund dieser Kopplung trotz periodischer Lochstruktur in der Diamantmembran geführt werden. Der Emissionsanteil in die beiden Halbräume bricht folglich lokal ein. Die von einem E_z -Dipol emittierten Photonen können hingegen prinzipiell nur an die TM-ähnlichen Moden koppeln, für die bei der verwendeten hexagonalen Anordnung von Luftzylindern in Diamant keine Bandlücke vorliegt. Daher werden diese Photonen zu einem großen Anteil in der Diamantmembran geführt und nicht in die Halbräume abgestrahlt (Abbildung 7.3e).

Transfer der Ergebnisse auf Strukturen mit einer anderen Gitterkonstante

Aufgrund der Skalierungsinvarianz der Maxwellgleichungen können die Simulationsergebnisse rein durch analytische Umrechnung auch auf photonische Strukturen mit einer anderen Gitterkonstante a übertragen werden. Wird bei einem M7-Resonator statt der bisherigen Gitterkonstante von $a = 211$ nm beispielsweise eine Gitterkonstante von $a = 226$ nm angenommen, so liegt die $o1$ -Mode statt der Fundamentalmode spektral bei der Wellenlänge der Nullphononenlinie des NV-Zentrums von 637 nm. Die $e1$ -Mode würde bei Wahl dieser Gitterkonstanten eine rotverschobene Resonanzwellenlänge von 680 nm aufweisen. Wird eine noch größere Gitterkonstante von $a = 244$ nm gewählt, so würde die Fundamentalmode des M7-Resonators der resultierenden photonischen Struktur bei einer Resonanzwellenlänge von 738 nm liegen. Dies entspricht der spektralen Position der Nullphononenlinie eines typischen SiV-Zentrums [120].

Neben den spektralen Positionen der Moden können ferner auch Kenngrößen der Auskopplung wie etwa die Sammeleffizienz oder auch der Sammelfaktor mithilfe der veränderten Gitterkonstante in den jeweiligen neuen Wellenlängenbereich umgerechnet werden. Wichtig ist zu betonen, dass durch die Umrechnung unter Ausnutzung der Skalierungsinvarianz der Maxwellgleichungen die quantitativen Auskopplungswerte unverändert bleiben. Weist beispielsweise die Sammeleffizienz der Fundamentalmode des M7-Resonators in der simulierten Nanostruktur ein Minimum von 3,9 % auf, so bleibt dieser Wert gleich, selbst wenn die zuvor simulierte photonische Kristallstruktur durch Variation der Gitterkonstante a umskaliert wird und die Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode sich dadurch von 637 nm (NV-ZPL) zu beispielsweise 738 nm (SiV-ZPL) verschiebt.

Transfer der Ergebnisse auf andere Dipolorientierungen

Bei den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Proben bildet die (001)-Ebene im Diamantgitter

die Oberfläche der Diamantmembranen. Ist ein NV-Zentrum vorhanden, so sind Stickstoffatom und Fehlstelle entlang einer der $\langle 111 \rangle$ -Achsen ausgerichtet und die beiden NV-Dipole senkrecht zu dieser Achse in der (111)-Ebene orientiert. Die konkrete Ausrichtung der Dipole in dieser Ebene ist aufgrund von vorliegenden Verspannungen für jedes Farbzentrum individuell, ebenso wie die relativen Dipolstärken (siehe Kapitel 2). Ist die Orientierung der NV-Dipole und ihre relative Stärke zueinander bekannt und zusätzlich die Ausrichtung der Resonatorachse relativ zu den beiden Dipolen bestimmt worden, so können aus den zuvor ermittelten Werten für die Auskopplungsgrößen auch die entsprechenden Werte für ein derart in einem M7-Resonator orientiertes NV-Zentrum ohne erneute Simulation rein analytisch berechnet werden. Wie in Kapitel 8 gezeigt werden wird, liegen die im Rahmen dieser Arbeit in Resonatoren implantierte NV-Zentren jedoch in Form von Ensembles vor. Um die Auskopplungsgrößen eines derartigen Ensembles abzuschätzen, wird im Folgenden über alle möglichen Orientierungen der NV-Dipole in der (111)-Ebene sowie über alle möglichen $\langle 111 \rangle$ -Achsen relativ zur Resonatorachse gemittelt.

Die konkrete geometrische Ausrichtung eines Dipols relativ zur photonischen Struktur beeinflusst die Auskopplungsgrößen wie etwa die Emissionsanteile in die beiden Halbräume zum einen direkt. So wird etwa, wie anhand der Simulationsergebnisse zu erkennen ist, bei Ausrichtung eines Dipols in z -Richtung der größte Anteil der emittierten Photonen in der Diamantmembran geführt, wohingegen bei einem in der xy -Ebene orientierten Dipol der größte Anteil der Photonen in die beiden Halbräume abgestrahlt wird. Des Weiteren beeinflusst die Dipolausrichtung die Auskopplungsgrößen aber auch indirekt. Angenommen ein Dipol sei in einem M7-Resonator nicht perfekt entlang der Resonatorachse in y -Richtung ausgerichtet. Dann erfährt dieser Dipolemitter bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode dennoch eine Erhöhung der spontanen Emissionsrate, der Purcell-Faktor ist im Vergleich zu einer optimalen Dipolorientierung zum Modenfeld jedoch verringert, da gemäß Gleichung (3.45) nur die Projektion des lokalen elektrischen Feldes auf die Dipolrichtung von Relevanz ist. Entscheidend ist jedoch, dass die aufgrund des Purcell-Effekts zusätzlich emittierten Photonen nicht alleine durch die geometrische Dipolorientierung determiniert abgestrahlt, sondern zunächst an die entsprechende Mode koppeln. Die Abstrahlcharakteristik dieser Photonen wird somit rein durch die Abstrahlcharakteristik der Mode bestimmt. Der Einfluss des Purcell-Effekts muss daher im Folgenden bei der Umrechnung der Auskopplungsgrößen auf eine neue Dipolorientierung mit berücksichtigt werden.

Aus den simulierten wellenlängenabhängigen Werten für Sammeleffizienz und Sammelfaktor können unmittelbar die jeweiligen Purcell-Faktoren F_i mit $i \in \{x, y, z\}$ bei Anregung mit einem in x , y oder z -Richtung orientierten elektrischen Dipolemitter wie folgt berechnet werden:

$$F_i = \frac{\text{Sammelfaktor}_i}{\text{Sammeleffizienz}_i} - 1 . \quad (7.20)$$

Ferner gilt für die jeweiligen Purcell-Faktoren per Definition in Gleichung (3.31):

$$F_i = \frac{\Delta\gamma_i}{\gamma} \quad (7.21)$$

mit der spontanen Emissionsrate γ eines Dipolemitters im freien Raum. $\Delta\gamma_i$ entspricht der

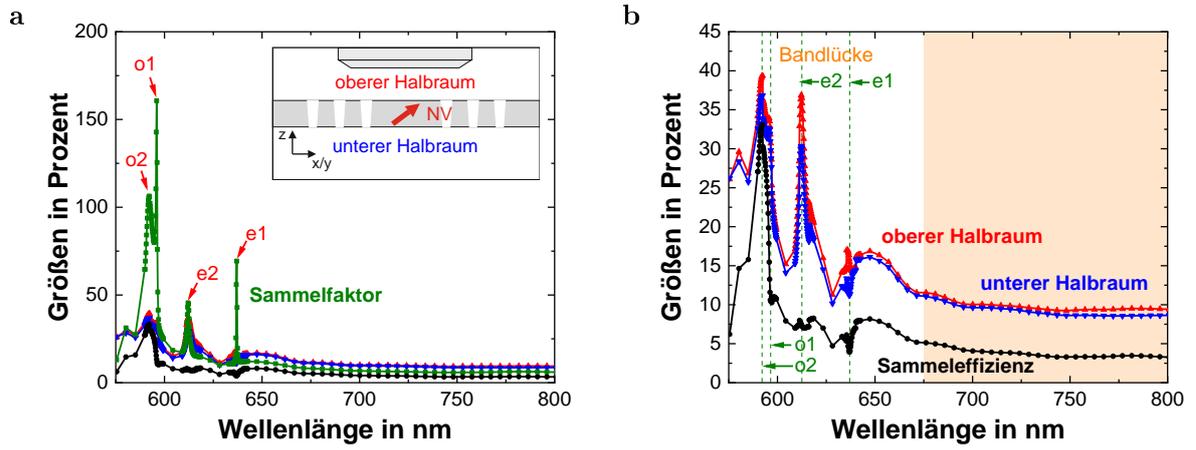


Abbildung 7.5: Untersuchung der Auskopplung von Licht aus einem M7-Resonator für ein Ensemble von NV-Zentren in einer (001)-Diamantprobe. (a und b) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen. Die Auskopplungsgrößen wurden auf Basis der zuvor bestimmten Werte für einen rein in x , y bzw. z -Richtung orientierten elektrischen Dipolemitter unter Berücksichtigung der vorliegenden mittleren Dipolorientierung sowie der durch die photonische Struktur bedingten Änderung der spontanen Emissionsrate berechnet.

jeweiligen Änderung der spontanen Emissionsrate durch die veränderte lokale Zustandsdichte. Die resultierenden Emissionsraten γ_i ergeben sich folglich zu $\gamma_i = \Delta\gamma_i + \gamma$.

Für eine Diamantmembran mit (001)-Oberfläche schließt die $\langle 111 \rangle$ -Achse mit der xy -Ebene einen Winkel von $35,3^\circ$ ein. Somit ergeben sich aufgrund elementargeometrischer Überlegungen die Projektionen einer in der (111)-Ebene orientierten Größe auf die x -Achse bzw. y -Achse im Mittel zu je 24,0% des Wertes und die Projektion auf die z -Achse im Mittel zu 52,0% des Wertes. Mithilfe dieser geometrischen Überlegungen sowie den Gleichungen (3.45), (7.20) und (7.21) können die spontanen Emissionsraten $\tilde{\gamma}_i$ der Projektionen des gemittelten NV-Dipols auf die x , y bzw. z -Achse wie folgt berechnet werden:

$$\tilde{\gamma}_i = \gamma_i \cdot k_i = \gamma \cdot \frac{\text{Sammelfaktor}_i}{\text{Sammeleffizienz}_i} \cdot k_i \quad (7.22)$$

mit $k_i = 0,24$ für $i \in \{x, y\}$ und $k_i = 0,52$ für $i \in \{z\}$. Der prozentuale Emissionsanteil, der die Projektion des gemittelten NV-Dipols auf die x , y oder z -Achse jeweils hervorruft, kann im Anschluss durch Normierung mit der Summe der spontanen Emissionsraten $\tilde{\gamma}_i$ ermittelt werden. Um schließlich beispielsweise die Sammeleffizienz bei der angenommen gemittelten Dipolorientierung eines NV-Zentrums zu erhalten, müssen die zuvor mithilfe der Simulationen ermittelten Sammeleffizienzen für einen in x , y und z -Richtung orientierten Dipolemitter mit dem Emissionsanteil der jeweiligen Dipolprojektion gewichtet und aufsummiert werden. Der resultierende Sammelfaktor kann anschließend aus der neuen Sammeleffizienz und dem resultierenden Purcell-Faktor $F = 0,24 \cdot F_x + 0,24 \cdot F_y + 0,52 \cdot F_z$ analog zu Gleichung (7.20) errechnet werden.

In Abbildung 7.5 sind die errechneten Werte für ein NV-Ensemble in einem M7-Resonator in ei-

ner (001)-Diamantprobe dargestellt. Bei der vorliegenden Dipolorientierung werden erwartungsgemäß sowohl die geraden Moden $e1$ und $e2$ als auch die ungeraden Moden $o1$ und $o2$ angeregt (Abbildung 7.5a). Die Emissionsanteile in die beiden Halbräume sowie die Sammeleffizienz sind bei dieser konkreten Dipolorientierung im Allgemeinen kleiner als für einen rein in x oder y -Richtung, aber immer noch größer als für einen rein in z -Richtung orientierten Dipolemitter (Abbildung 7.5b). Des Weiteren ist zu erkennen, dass bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode weiterhin ein deutlicher Einbruch der Sammeleffizienz vorliegt. Die Sammeleffizienz weist dabei mit einem Minimum von 4,0% einen im Vergleich zu dem bei Anregung mit einem rein in y -Richtung orientierten Dipolemitter zuvor ermittelten Minimum von 3,9% lediglich leicht vergrößerten Wert auf. Die Einbrüche bei den Resonanzwellenlängen der $e2$ -Mode und der $o1$ -Mode sind hingegen im Vergleich zur Sammeleffizienz bei umliegenden Wellenlängen bei der vorliegenden Dipolorientierung kaum noch von Relevanz. Bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode weist die Sammeleffizienz für ein modelliertes NV-Ensemble in einer (001)-Diamantmembran weiterhin einen hohen Wert von 33% auf, der hier sogar das globale Maximum darstellt.

Abschließend ist noch anzumerken, dass aufgrund der durch die konkrete Dipolorientierung verminderten Purcell-Faktoren die zu den Moden gehörenden Sammelfaktoren niedriger sind als für einen zuvor simulierten rein in x oder y -Richtung orientierten Dipolemitter (Abbildung 7.5a). Folglich kann beispielsweise bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode auch bei der vorliegenden Dipolorientierung ein großer Anteil von hier 33% der emittierten Photonen aufgesammelt werden, die Anzahl der insgesamt bei dieser Wellenlänge aufgesammelten Photonen ist jedoch geringer als für einen rein in x -Richtung orientierten Dipolemitter.

Einfluss weiterer Simulationsparameter

Um zuverlässige Simulationsergebnisse hinsichtlich der Auskopplung von Licht aus einer photonischen Struktur zu erhalten, ist es zunächst unerlässlich, eine PML-Schicht zu implementieren, die Reflexionen an den Rändern der Simulationszelle vollständig unterbindet. An den Rändern der Zelle reflektierte Energie würde erneut die Energiemonitore durchströmen und somit die Ergebnisse verfälschen. In Lumerical stehen mehrere PML-Arten zur Verfügung. Für den in den durchgeführten Simulationen gewählten Typus (*stretched coordinate pml*) wurden exemplarisch für die Fundamentalmode des M7-Resonators die fünf verschiedenen Auskopplungsgrößen sowie Purcell-Faktor und Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Dicke der absorbierenden Schicht bestimmt. Dabei zeigt sich, dass bei Implementierung von mindestens 16 PML-Schichten keine Veränderung der jeweiligen Größen mehr auftritt. Die in den Simulationen gewählte Anzahl von 32 PML-Schichten ist folglich als vollkommen hinreichend anzusehen.

Ferner kann auch die numerische Auflösung Auswirkungen auf die in den Simulationen ermittelten Werte haben. Wie in Abschnitt 4.3.2 dargelegt wurde, wird zur Simulation der photonischen Kristallstruktur ein Yee-Gitter verwendet. Die Simulationszelle wird in kleine, identisch große Bereiche diskretisiert, die wiederum aus mehreren Simulationspixeln bestehen. In Lumerical wird die Auflösung in Anzahl an Simulationspixeln pro Wellenlänge angegeben. Je größer diese Anzahl ist, desto zuverlässiger sind die ausgegebenen Werte, allerdings steigt auch der Rechenaufwand

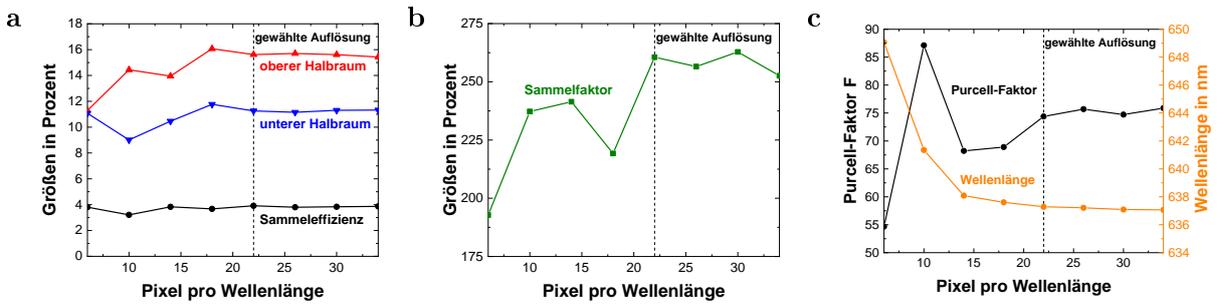


Abbildung 7.6: Untersuchung des Einflusses der numerischen Auflösung exemplarisch für die $e1$ -Mode des M7-Resonators. (a) Abhängigkeit der Sammeleffizienz (schwarz), Anteil der Emission in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der Emission in den unteren Halbraum (blau), (b) Abhängigkeit des Sammelfaktors (grün) und (c) Abhängigkeit des Purcell-Faktors (schwarz) und Wellenlänge der $e1$ -Mode (orange) von der numerischen Auflösung in Simulationspixeln pro Wellenlänge.

mit zunehmender Auflösung bei den hier vorliegenden dreidimensionalen Simulationen in der dritten Potenz an. Das Ziel ist, durch Wahl einer geeigneten Auflösung zuverlässige Simulationsergebnisse bei einer akzeptablen Simulationsdauer zu erzielen.

Wie in Abbildung 7.6a exemplarisch für die $e1$ -Mode dargestellt ist, ändern sich die Sammeleffizienz sowie die Emissionsanteile in die beiden Halbräume kaum in Abhängigkeit der Auflösung und bleiben ab etwa 16 Pixeln pro Wellenlänge nahezu konstant. Der Sammelfaktor zeigt bei niedrigen Auflösungen stärkere Schwankungen, ab 22 Pixeln pro Wellenlänge ändert sich jedoch auch der Betrag dieser Größe kaum noch (Abbildung 7.6b). Die numerische Auflösung hat ferner einen Einfluss auf Wellenlänge und Purcell-Faktor der Moden. Der Purcell-Faktor schwankt beispielsweise für die $e1$ -Mode bei geringen Auflösungen stark zwischen $F = 55$ und $F = 90$ und pendelt sich ab einer Auflösung von 22 Simulationspixeln pro Wellenlänge um einen Wert von $F = 75$ ein. Die Resonanzwellenlänge fällt zunächst mit zunehmender Auflösung ab und erreicht ab einer Auflösung von 14 Pixeln pro Wellenlänge einen nahezu konstanten Wert (Abbildung 7.6c). Aus den durchgeführten Untersuchungen lässt sich schlussfolgern, dass die in den Simulationen gewählte Auflösung von 22 Pixeln pro Wellenlänge erforderlich ist, um zuverlässige Simulationsergebnisse zu erhalten. Eine höhere Auflösung wäre selbsterklärend noch besser, allerdings beträgt die Dauer einer Simulation auf einem leistungsstarken Computer so bereits 24 h und würde bei der maximalen von Lumerical unterstützten Auflösung etwa 96 h betragen.

7.2.2 M3-Resonator

Die photonische Kristallstruktur wird ebenfalls mit einer Gitterkonstante von $a = 211$ nm und einer damit verbundenen Schichtdicke des Diamantfilms von $h = 232$ nm simuliert. Für diese Parameter liegt auch die Fundamentalmode des M3-Resonators mit 202 umgebenden Luftzylindern und einem angenommenen Inklinationswinkel der Lochseitenwände von 4° bei einer Wellenlänge von 637 nm und somit in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums.

Simulationsergebnisse

Die Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.7 dargestellt. Bei Implementierung eines E_y -Dipols als Quelle können die beiden gerade Moden $e1$ und $e2$ angeregt werden. Die $e1$ -Mode ist die Fundamentalmode des Resonators, deren Wellenlänge mit der spektralen Lage der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums bei 637 nm übereinstimmt. Die $e2$ -Mode liegt mit einer Resonanzwellenlänge von 574,5 nm außerhalb des untersuchten Wellenlängenbereichs, in Abbildung 7.7a lässt sich die Existenz der $e2$ -Mode jedoch bereits anhand des Verlaufs des Sammelfaktors gegen 575 nm erkennen. Diese Mode wird im Folgenden aufgrund der spektralen Randlage nicht weiter betrachtet. Die Sammeleffizienz weist auch bei diesem Resonatortyp bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode ein Minimum von hier 3,8 % auf, wohingegen bei anderen Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke Werte um 26 % erzielt werden (Abbildung 7.7b). Der dennoch hohe Sammelfaktor von 350 % bei der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode lässt in Einklang mit der Reduktion der Sammeleffizienz erneut auf eine erhöhte lokale Zustandsdichte schließen, wie bereits zuvor für die $e1$ -Mode des M7-Resonators ausführlich erläutert wurde.

Bei Implementierung eines E_x -Dipols können im simulierten Wellenlängenbereich zwei ungerade Moden angeregt werden, die $o1$ -Mode bei 606 nm und die $o2$ -Mode bei 597 nm (Abbildung 7.3c). Die Sammeleffizienz bricht für die $o1$ -Mode von Werten um 23 % innerhalb der photonischen Bandlücke auf einen Wert von 3,2 % ein (Abbildung 7.3d). Neben diesem Minimum weist die Sammeleffizienz aber auch blauverschoben zur $o1$ -Mode einen Wellenlängenbereich mit überdurchschnittlich hohen Sammeleffizienzen von bis zu 36 % auf. Die bei einer Resonanzwellenlänge von 597 nm positionierte $o2$ -Mode profitiert hiervon mit einer hohen Sammeleffizienz von 32 %. Eine ähnliche Beobachtung wurde zuvor bereits für die $o2$ -Mode des M7-Resonators gemacht, die ebenfalls eine überdurchschnittlich hohe Sammeleffizienz aufweist. Der Sammelfaktor der $o2$ -Mode des M3-Resonators ist sogar aufgrund der guten Abstrahlcharakteristik trotz eines geringeren Gütefaktors und der damit verbundenen geringeren Zustandsdichte mit einem Betrag von 750 % höher als die Sammelfaktoren von $o1$ -Mode und $e1$ -Mode. Die $o2$ -Mode sollte folglich in spektroskopischen Analysen unter den angesprochenen Resonatormoden die größte Intensität aufweisen, wie experimentell für M3-Resonatoren hinreichend bestätigt werden konnte.

Wie bereits zuvor für den M7-Resonator ausführlich dargelegt wurde, können die Einbrüche der Sammeleffizienz bei den Resonanzwellenlängen der betroffenen Moden auch bei diesem Resonatortyp durch eine veränderte Abstrahlcharakteristik erklärt werden. Der Anteil der in den oberen Halbraum emittierten Photonen nimmt bei den Resonanzwellenlängen der $e1$ -Mode und der $o1$ -Mode jeweils ab (Abbildung 7.7b und 7.7d). Darüber hinaus wird von diesen in den oberen Halbraum emittierten Photonen bei den betroffenen Moden ein geringerer Anteil in die numerische Apertur des Objektivs emittiert (Abbildung 7.7f). Bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode hingegen liegt der Anteil der in den oberen Halbraum emittierten Photonen bei über 45 %, ferner werden etwa 75 % dieser Photonen im Fernfeld in Polarwinkel $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ emittiert und können somit von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgefangen werden. Die Folge ist eine hohe Sammeleffizienz bei der Resonanzwellenlänge der $o2$ -Mode.

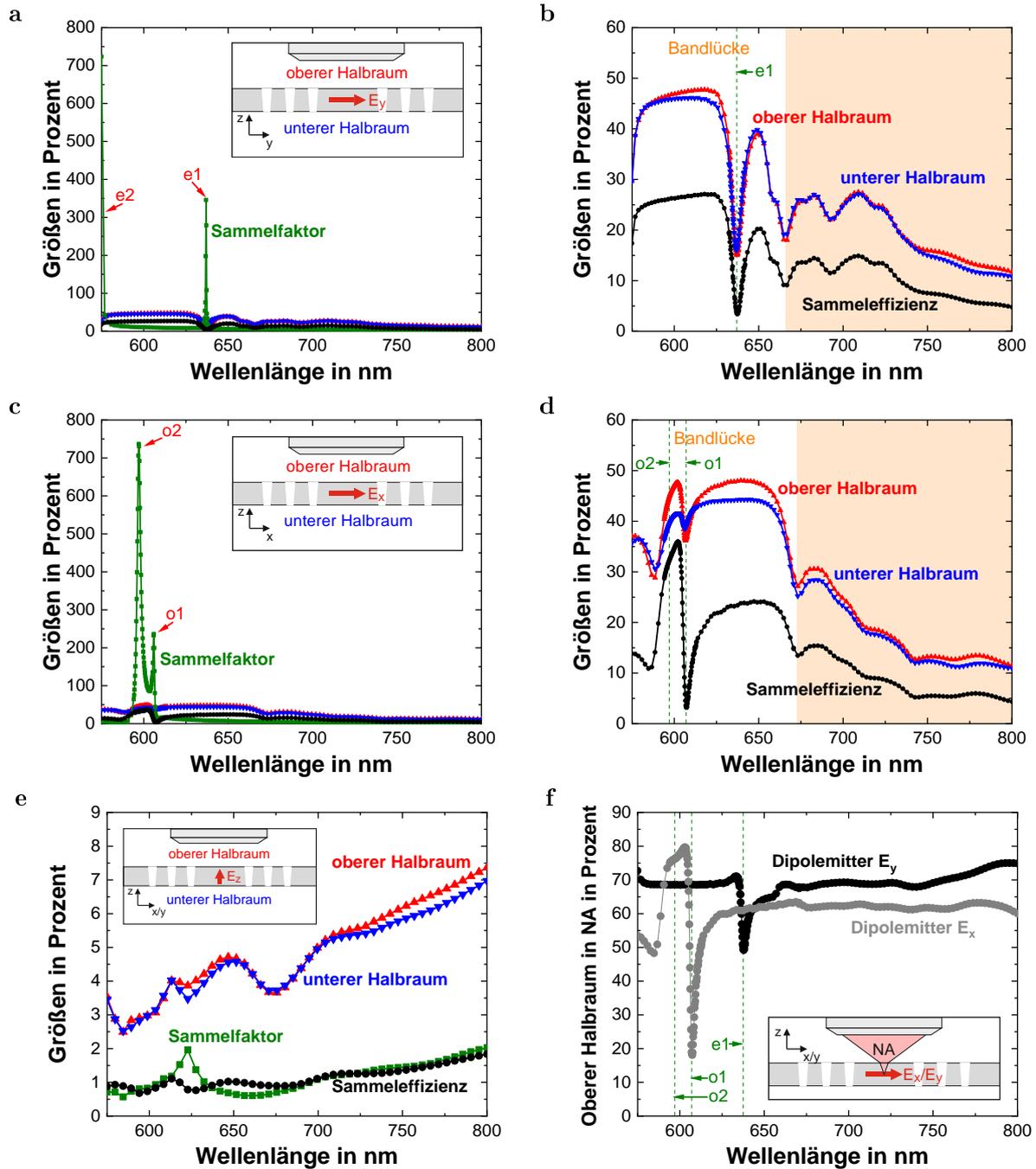


Abbildung 7.7: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M3-Resonator. (a-e) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in x -Richtung (c und d) mit einer Vergrößerung in (d) sowie für einen Dipol in z -Richtung (e). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen. (f) Anteil des durch die Ebene S transmittierten Lichts, das von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann, für einen Dipol in x -Richtung (grau) und y -Richtung (schwarz).

7.2.3 M0-Resonator

Die photonische Kristallstruktur wird mit einer Gitterkonstante von $a = 237$ nm und einer damit verbundenen Schichtdicke des Diamantfilms von $h = 228$ nm simuliert. Für diese Parameter liegt die Fundamentalmode des M0-Resonators mit 200 umgebenden Luftzylindern und einem angenommenen Inklinationswinkel der Lochseitenwände von 4° bei einer Wellenlänge von 637 nm und somit in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums.

Simulationsergebnisse

Die Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.8 dargestellt. Dieser Resonatortyp weist wie bereits in Kapitel 4 angesprochen nur eine einzige Mode auf, die bei Implementierung eines E_y -Dipols angeregt werden kann. Die Sammeleffizienz nimmt bei der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode erneut ein lokales Minimum von hier 3,4 % an, wohingegen bei anderen Wellenlängen Werte um 25 % innerhalb der photonischen Bandlücke erzielt werden (Abbildung 7.8b). Der Sammelfaktor steigt für die spektrale Position der $e1$ -Mode auf einen Wert von 920 % an (Abbildung 7.8a). Dieser trotz stärkstem Einbruch in der Sammeleffizienz erzielte höchste Sammelfaktor unter den Moden aller betrachteter Resonatortypen lässt erneut auf eine stark erhöhte lokale Zustandsdichte bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode schließen.

Das bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode auftretende Minimum der Sammeleffizienz kann auch bei diesem Resonatortyp durch eine veränderte Abstrahlcharakteristik erklärt werden. Der Anteil der in den oberen Halbraum emittierten Photonen nimmt bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode stark ab auf Werte unter 12 % (Abbildung 7.7b). Darüber hinaus wird von diesen in den oberen Halbraum emittierten Photonen ein im Vergleich zu anderen Wellenlängen geringerer Anteil in die numerische Apertur des Objektivs emittiert, wie bereits zuvor für die Fundamentalmoden der beiden anderen Resonatortypen zu beobachten war.

Speziell bei diesem Resonatortyp lässt sich die gegenüber einer symmetrischen Nanostruktur veränderte Abstrahlcharakteristik in die beiden Halbräume deutlich erkennen. Auch bei einem M3 oder M7-Resonator werden im Mittel mehr Photonen in den oberen Halbraum als in den unteren Halbraum abgestrahlt, die Differenz der beiden Emissionsanteile ist bei einem M0-Resonator jedoch deutlich größer (Abbildung 7.8b und 7.8d). Die Kegelform der in dem Diamantfilm hergestellten Löcher und der dadurch hervorgerufene Symmetriebruch führt bei diesem Resonatortyp sogar dazu, dass für einen großen Wellenlängenbereich innerhalb der photonischen Bandlücke mehr als 50 % der insgesamt emittierten Photonen in den oberen Halbraum abgestrahlt werden. Darüber hinaus lässt sich bei dem simulierten M0-Resonator ebenfalls die Wirkung der Bandlücke für TE-Moden bei Betrachtung der Summe der Anteile der Emission in die beiden Halbräume erkennen. Sowohl bei Anregung mit einem E_x -Dipol als auch bei Anregung mit einem E_y -Dipol werden über weite Wellenlängenbereiche hinweg 95 % der Photonen aus der Diamantmembran heraus in einen der beiden Halbräume abgestrahlt und nur 5 % der Photonen trotz des periodischen Lochgitters in der Diamantmembran geführt.

Es sei erneut angemerkt, dass bei Anregung mit einem E_z -Dipol für die emittierten Photonen keine photonische Bandlücke bei der vorliegenden hexagonalen Anordnung aus Luftzylindern in

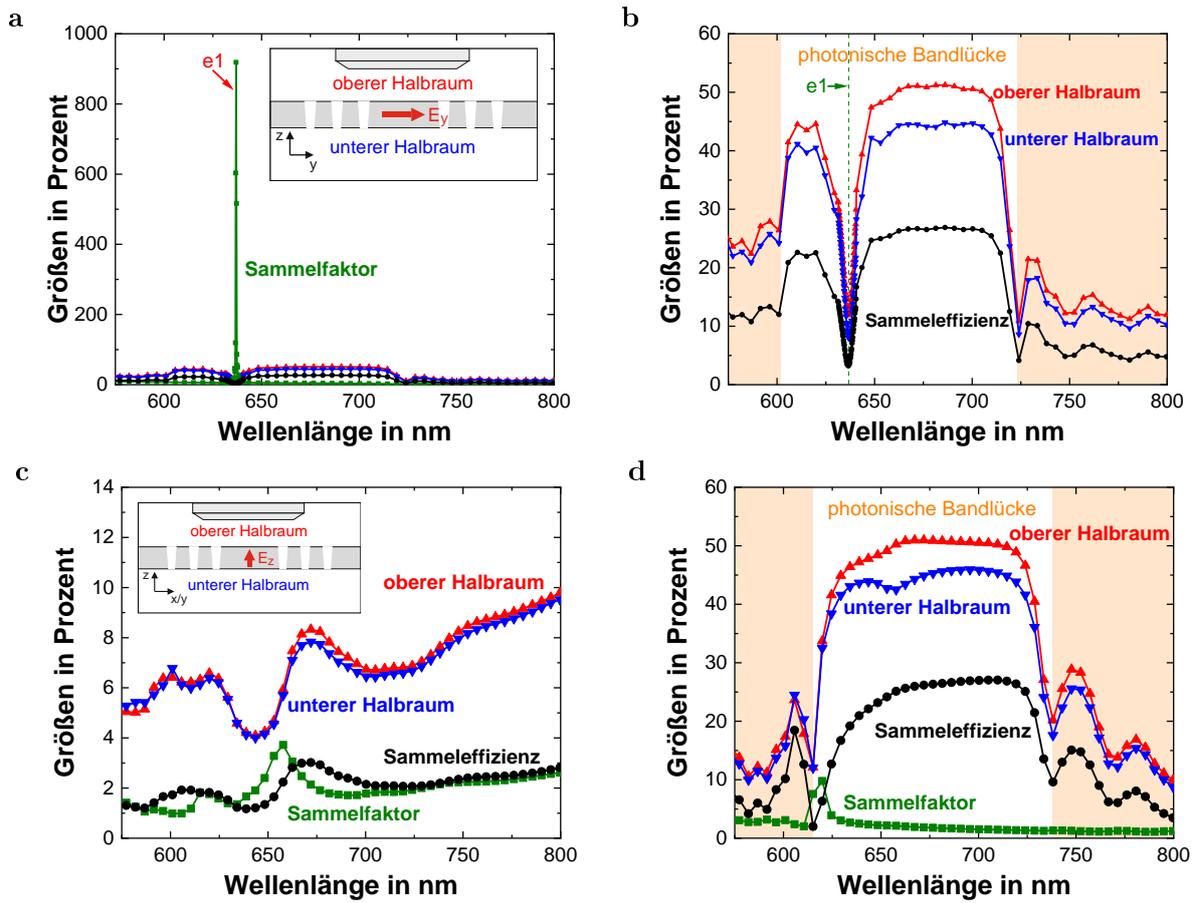


Abbildung 7.8: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M0-Resonator. (a-d) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in z -Richtung (c) sowie für einen Dipol in x -Richtung (d). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen.

Diamant existiert und daher bei Anregung mit einem in z -Richtung orientierten elektrischen Dipol ein Großteil der Emission durch Kopplung an TM-Moden innerhalb der Diamantmembran geführt und somit nicht abgestrahlt wird (Abbildung 7.8c).

7.3 Optimierung der Abstrahlung von Licht aus photonischen Strukturen

Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen können optische Felder in kleinen Volumina V bei hohen Gütefaktoren Q einschließen. Die damit verbundenen hohen Feldstärken am Ort des Emitters führen zu einer erhöhten Emissionsrate, die sich in einem hohen Purcell-Faktor quantifiziert. Da sich die Modenvolumina kaum unterscheiden, sind vor allem die Resonatormoden

mit einem hohen Gütefaktor für die potenzielle Kopplung eines Emitters an den Resonator von Interesse. Den höchsten Gütefaktor weist bei den untersuchten Resonatortypen die jeweilige Fundamentalmode auf, bei deren Resonanzwellenlänge die Sammeleffizienz ausgerechnet ihr globales Minimum mit Werten zwischen 3,4% bis hin zu 3,9% annimmt. Ziel ist es daher, durch Anwenden geeigneter Methoden die Sammeleffizienz bei der Resonanzwellenlänge der jeweiligen Fundamentalmode für die drei betrachteten Resonatortypen zu verbessern.

In den vergangenen Jahren wurden zahlreiche Methoden entwickelt, um die Abstrahlcharakteristik eines an eine Resonatormode gekoppelten Emitters derart zu optimieren, dass die resultierende Sammeleffizienz bei Verwendung eines vertikal über der photonischen Kristallstruktur positionierten Objektivs verbessert werden kann. Eine konkrete Möglichkeit ist, die Fernfeldverteilung bei der Resonanzwellenlänge einer Mode durch Verschieben einzelner den Resonator umgebender Löcher oder durch Variation der Lochradien derart zu verändern, dass die Intensitätsanteile in große Polarwinkel im Fernfeld minimiert werden [259,260]. So konnte beispielsweise durch Optimierung von 18 einen M3-Resonator in Galliumarsenid umgebenden Luftzylindern eine Steigerung der Sammeleffizienz um einen Faktor 4,5 erzielt werden. Der Gütefaktor der Mode reduzierte sich durch die Optimierung der Löcher moderat von 11 000 auf 8500 [260].

Eine im Gegensatz dazu systematische Methode zur Verbesserung der Sammeleffizienz ist das Prinzip der Bandfaltung [261–265]. Die Intensitätsverteilung des Modenfeldes eines Resonators in einer zweidimensionalen photonischen Kristallstruktur hat im reziproken Raum Maxima an den Rändern der ersten Brillouinzone, konzentriert um die vier M -Punkte (siehe Kapitel 4). Die im Fernfeld detektierte Abstrahlung wird hauptsächlich durch die Ausläufer dieser Maxima hervorgerufen, die bis in den Lichtkegel hinein reichen. Das Fernfeld weist folglich eine sehr breite Intensitätsverteilung auf. Um die Emissionsanteile in große Polarwinkel im Fernfeld zu minimieren, wird ein Übergitter mit einer gegenüber dem ursprünglichen Gitter verdoppelten Gitterkonstante von $2a$ etwa durch periodische Variation der Radien der den Resonator umgebenden Luftzylinder hervorgerufen. Dadurch wird die reziproke Feldverteilung im Fourierraum gefaltet, Repliken der Intensitätsmaxima erscheinen genau in der Mitte der Brillouinzone. Die Emission ins Fernfeld erfolgt somit hauptsächlich in vertikaler Richtung und damit verbunden in kleine Polarwinkel. Die Sammeleffizienz bei Detektion durch ein vertikal über der Nanostruktur positioniertes Objektiv steigt folglich an.

Aufgrund der erläuterten Auswirkungen auf die Feldverteilung der Moden ist das Prinzip der Bandfaltung jedoch nicht mit dem Prinzip des *gentle confinement* vereinbar. Bei dem in Kapitel 4 für die Optimierung der Gütefaktoren eingesetzten Prinzip wird durch Variation der Lochparameter das Fernfeld derart optimiert, dass die Intensitätsanteile innerhalb des Lichtkegels und folglich auch die vertikal abgestrahlten Anteile minimiert werden, statt wie beim Prinzip der Bandfaltung maximiert zu werden. Eine Verbesserung der Sammeleffizienz durch ein Übergitter bringt folglich stets eine Reduktion des Gütefaktors der Resonatormoden mit sich.

Neben einfachen Übergittern [263,265] wurden in den vergangenen Jahren auch doppelte Übergitter [261,262] realisiert. So konnte beispielsweise in einem Siliziumfilm durch ein doppeltes Übergitter für eine Mode eines simulierten M1-Resonators eine Steigerung der Sammeleffizienz um einen Faktor von drei bis vier erzielt werden [262]. Für einen simulierten M3-Resonator in Si-

litzium wurde für die Fundamentalmode durch ein einfaches Übergitter eine ähnliche Steigerung der Sammeleffizienz um einen Faktor 3,5 erreicht [263]. Darüber hinaus wird in allen genannten Veröffentlichungen erwartungsgemäß von einer damit einhergehenden Verminderung des Gütefaktors berichtet.

Als Variation kann die Sammeleffizienz mithilfe des Prinzips der Bandfaltung auch verbessert werden, indem zwischen den vorhandenen Luftzylindern des photonischen Kristallgitters zusätzlich kleine Luftlöcher in periodischer Anordnung hergestellt werden [266]. Diese Luftlöcher weisen nur eine geringe Tiefe auf und durchdringen die Membran insbesondere nicht vollständig. Das abgestrahlte Licht wird dadurch zum einen verstärkt in den oberen Halbraum emittiert. Des Weiteren bilden die flachen Luftzylinder ein Übergitter, das gemäß des Prinzips der Bandfaltung die Richtung der Lichtabstrahlung hin zu kleinen Polarwinkeln im Fernfeld optimiert. Die Verbesserung der Sammeleffizienz geht auch hier aufgrund der Unvereinbarkeit des Prinzips der Bandfaltung mit dem Prinzip des *gentle confinement* mit einer Verringerung der Gütefaktoren der Resonatormoden einher.

Alternativ kann die Sammeleffizienz auch durch das Anbringen einer reflektierenden Schicht unterhalb der photonischen Kristallstruktur gesteigert werden [259]. In den unteren Halbraum abgestrahlte Photonen können nach Reflexion an dieser Schicht ebenfalls in den oberen Halbraum gelangen und je nach vorliegendem Polarwinkel im Fernfeld von einem vertikal über der Probe positionierten Objektiv aufgesammelt werden. Darüber hinaus kann das elektrische Feld der Mode durch einen in der Nähe positionierten Spiegel unter Umständen sogar hin zu einer optimierten Abstrahlcharakteristik beeinflusst werden. Dies kann die Sammeleffizienz zusätzlich erhöhen. Die hinzugefügte Schicht kann jedoch auch Auswirkungen auf den Gütefaktor einer Resonatormode haben. Der simulierte Gütefaktor für eine exemplarisch betrachtete Mode eines M1-Resonators in Silizium bricht beispielsweise ein, wenn ein Spiegel näher als eine halbe Wellenlänge an der Membran positioniert ist und wird sogar leicht erhöht, wenn ein größerer Spiegelabstand geeignet gewählt wird [259]. Reflektierende Schichten wurden auch bereits erfolgreich in Designs für optische Antennen eingesetzt. So konnte beispielsweise durch Positionierung eines Goldspiegels parallel zu einer dielektrischen Schicht, die mit einem in einer bestimmten Tiefe inkorporierten Emitters versehen wurde und eine Diamantmembran mit einem NV-Zentrum darstellen könnte, eine theoretische Sammeleffizienz von über 99% erzielt werden [267], die zumindest für einen inkorporierten Quantenpunkt auch experimentell bestätigt werden konnte [268].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Einfluss eines im unteren Halbraum, parallel zur Diamantmembran positionierten Goldspiegels auf die Auskopplungsgrößen sowie die Gütefaktoren der Resonatormoden untersucht. Dazu wurden Simulationen für die drei betrachteten Resonatortypen durchgeführt, auf die im Folgenden näher eingegangen wird. In diesem Rahmen wird insbesondere thematisiert, bei welchem Abstand des Goldspiegels die Sammeleffizienz bei der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode des jeweiligen Resonatortyps ihren Maximalwert annimmt und inwiefern die Gütefaktoren der Moden durch einen Goldspiegel bei diesem Abstand beeinflusst werden. Ferner wird auch auf die Auswirkungen der reflektierenden Schicht auf die anderen Auskopplungsgrößen bei den verschiedenen Wellenlängen eingegangen. Anschließend wird der Herstellungsprozess eines solchen erweiterten und hinsichtlich der Sammeleffizienz opti-

mierten Probensystems beschrieben. In diesem Rahmen wird insbesondere die Umsetzbarkeit des durch die Simulationen bestimmten angestrebten Abstandes zwischen Diamantfilm und Spiegel von wenigen hundert Nanometern mittels eines Gold-Gold-Verbindungsprozesses gezeigt.

7.3.1 Optimierung der Abstrahlung durch einen Goldspiegel

Die Größe der Simulationszelle, die gewählte Auflösung und auch die Dicke der PML-Schicht bleiben im Folgenden im Vergleich zu den im vorherigen Abschnitt dargelegten Simulationen unverändert. Zusätzlich wird in der Simulationszelle ein Goldblock eingefügt, der in einem variablen Abstand unterhalb der Diamantmembran positioniert ist und die Zelle in der xy -Ebene vollständig ausfüllt. Die Materialparameter für die optischen Eigenschaften sowie das Absorptionsverhalten des Goldfilms werden aus der Literatur übernommen [269]. Bei Verwendung eines Metallspiegels treten neben Verlusten durch Absorption auch Verluste durch die Kopplung an plasmonische Oberflächenmoden auf. Durch die Wahl von Luft als Medium zwischen Goldschicht und Diamantmembran wird aufgrund des geringen Brechungsindex diese unerwünschte Kopplung minimiert [267]. Zusätzlich hat der gewählte Abstand zwischen Goldspiegel und Diamantmembran einen Einfluss auf die Stärke der Kopplung an die plasmonischen Oberflächenmoden.

Die Energieflussmonitore und auch die Ebene S behalten ihre in Abbildung 7.1a dargestellte Lage in der Simulationszelle bei. Zum Aufsammeln der Emission wird wie gewohnt ein vertikal über der Diamantmembran positioniertes Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 angenommen. Des Weiteren werden die Simulationen erneut für die drei orthogonalen Orientierungen eines Dipolemitters in x -Richtung (E_x), in y -Richtung (E_y) sowie in z -Richtung (E_z) separat durchgeführt. Die Quelle modelliert erneut einen breitbandigen Emittor im Wellenbereich von 575 nm bis hin zu 800 nm, der kurz zu einer erzwungenen Schwingung angeregt wird und anschließend abklingt. Die Simulationen stoppen, wenn die Energie in der Simulationszelle auf 10^{-4} des Anfangswertes abgefallen ist. Der Dipolemitter wird jeweils im Feldmaximum der Fundamentalmode des jeweiligen Resonators positioniert.

M7-Resonator

Zunächst wurde der Abstand des Goldspiegels von der Diamantmembran variiert und bei Anregung mit einem E_y -Dipol die Sammeffizienz, die Emissionsanteile in die beiden Halbräume und auch der Sammelfaktor bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode jeweils bestimmt. Die Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.9a dargestellt. Die Sammeffizienz der Fundamentalmode kann bei Wahl eines optimalen Abstandes des Goldspiegels von 400 nm um einen Faktor 1,5 von 3,9 % auf einen Wert von 5,6 % gesteigert werden. Auch für einen großen Bereich von Abständen ab 150 nm bis hin zu mehr als 700 nm liegt die erzielte Sammeffizienz noch über dem Wert, der zuvor für die $e1$ -Mode des M7-Resonators ohne Goldspiegel erzielt wurde. Für Abstände kleiner als 150 nm bricht der Anteil der aufgesammelten Photonen hingegen erwartungsgemäß ein. Der Sammelfaktor zeigt ein ähnliches Verhalten und nimmt insbesondere bei einem Abstand von 400 nm ebenfalls sein Maximum an.

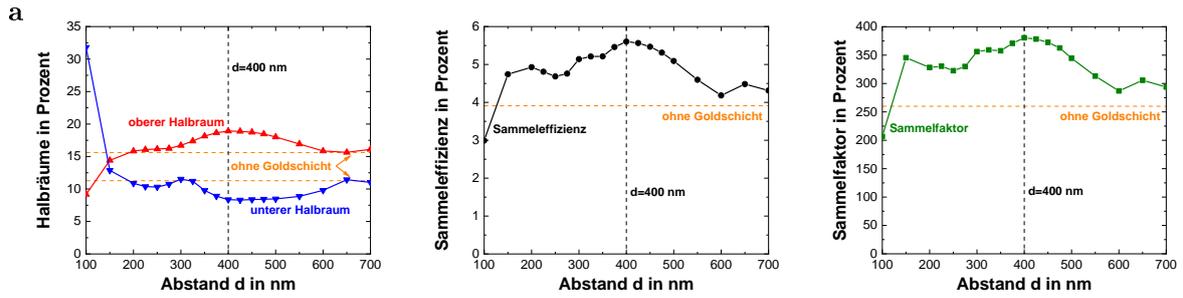
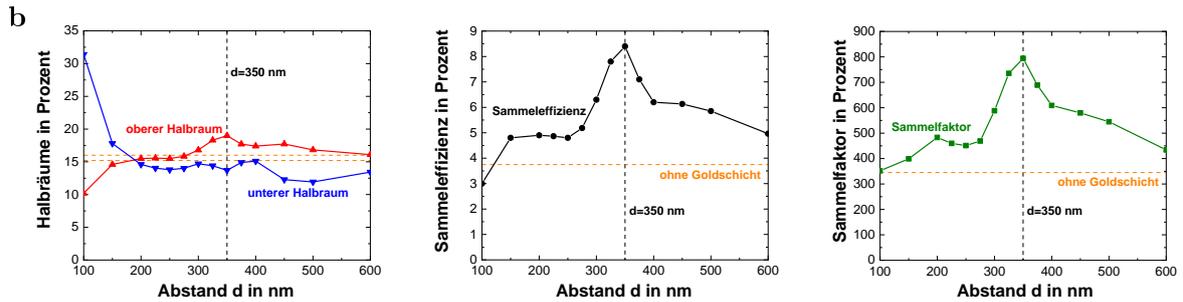
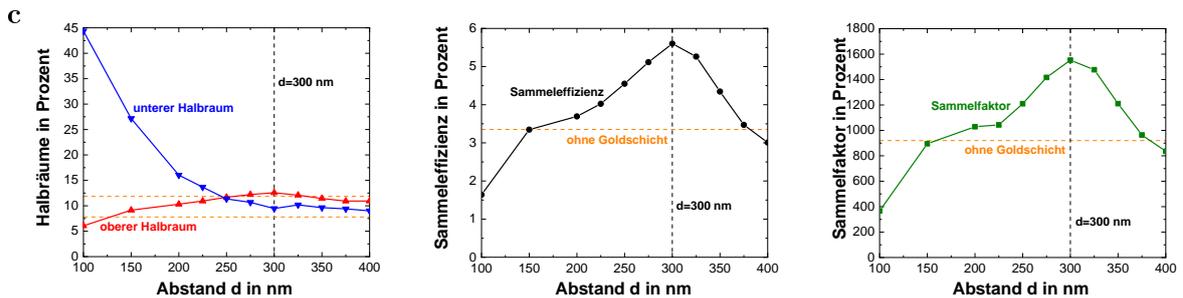
M7-Resonator: Abstandsvariation Goldspiegel e_1 -ModeM3-Resonator: Abstandsvariation Goldspiegel e_1 -ModeM0-Resonator: Abstandsvariation Goldspiegel e_1 -Mode

Abbildung 7.9: Einfluss des Abstands des Goldspiegels auf die Auskopplungsgrößen. Anteil der Emission in den oberen Halbraum (rot) und den unteren Halbraum (blau), Sammeleffizienz (schwarz) und Sammelfaktor (grün) jeweils für die Fundamentalmode (a) des M7-Resonators, (b) des optimierten M3-Resonators und (c) des optimierten M0-Resonators. Die orangene Linie kennzeichnet jeweils die in den Simulationen ohne Goldspiegel für die Fundamentalmode ermittelten Werte. Die schwarze Linie kennzeichnet den optimalen Abstand des Goldspiegels.

Die beobachtete Erhöhung von Sammelfaktor und Sammeleffizienz für die e_1 -Mode durch Hinzufügen eines Goldspiegels kann zum einen durch die optimierte Abstrahlung von Licht in die beiden Halbräume erklärt werden. In einem großen Abstandsbereich zwischen 200 nm und 650 nm wird für die e_1 -Mode der Anteil der Emission in den oberen Halbraum erhöht und gleichzeitig, aber nicht gleichsam, der Emissionsanteil in den unteren Halbraum vermindert. Die Sammeleffizienz steigt jedoch stärker an, als dies rein aufgrund des erhöhten Emissionsanteils von Licht in

den oberen Halbraum zu erwarten wäre. Dies lässt darauf schließen, dass durch Hinzufügen des Goldspiegels zusätzlich die Intensitätsverteilung der $e1$ -Mode im Fernfeld beeinflusst wird.

Die weiteren Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.10 dargestellt. Der Goldspiegel wurde jeweils in dem für die $e1$ -Mode optimierten Abstand von 400 nm positioniert. Bei Implementierung eines E_y -Dipols werden erneut die geraden Moden $e1$ und $e2$ und bei Implementierung eines E_x -Dipols die ungeraden Moden $o1$ und $o2$ angeregt (Abbildung 7.10a und 7.10c). Die zugehörigen Resonanzwellenlängen und auch die Gütefaktoren werden durch das Hinzufügen des Goldspiegels nicht beeinflusst, ganz im Gegensatz zu der erzielten Sammeleffizienz. Für einen in x oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter kann die Sammeleffizienz bei allen Wellenlängen mit Ausnahme der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode gesteigert werden (Abbildung 7.10b und 7.10d). Der Anteil der aufgesammelten Photonen der $o1$ -Mode wird durch den Goldspiegel von 11 % auf 7,9 % vermindert. Für die $e1$ -Mode steigt der Wert hingegen von 3,9 % auf 5,6 %, für die $e2$ -Mode von 7,8 % auf 12 % und für die $o2$ -Mode von 40 % auf 45 % an.

Um die durch das Hinzufügen des Goldspiegels hervorgerufenen Änderungen der Sammeleffizienz erklären zu können, wird im Folgenden erneut die Abstrahlcharakteristik näher betrachtet. Bei nahezu allen Wellenlängen weist die Emission in den oberen Halbraum mit bis zu 70 % deutlich größere Werte auf als die Emission in den unteren Halbraum (Abbildung 7.10b und 7.10d). Lediglich die Emission bei der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode wird durch das Hinzufügen des Goldspiegels für einen in x -Richtung orientierten Dipolemitter mit einem Emissionsanteil von 57 % vornehmlich in den unteren Halbraum gelenkt. Bei Anregung mit einem E_x -Dipol ist der Emissionsanteil in den oberen Halbraum bei der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode ferner mit 21 % im Vergleich zum M7-Resonator ohne Goldspiegel mit 35 % deutlich reduziert. Darüber hinaus wird für diese Mode nach Hinzufügen eines Goldspiegels ein geringerer Anteil der in den oberen Halbraum emittierten und durch die Ebene S transmittierten Photonen in Polariswinkel $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ im Fernfeld abgestrahlt als ohne Goldspiegel (Abbildung 7.10f). Diese beiden Effekte erklären zusammengenommen die erzielte Verminderung der Sammeleffizienz bei der Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode. Für die beiden geraden Moden wird hingegen durch das Hinzufügen des Goldspiegels nicht nur ein größerer Anteil der Photonen in den oberen Halbraum emittiert, sondern zusätzlich auch der Transmissionsanteil in die numerische Apertur des Objektivs erhöht. Die Sammeleffizienz steigt daher bei deren Resonanzwellenlängen jeweils an.

Ein Goldspiegel beeinflusst somit bei einem M7-Resonator sowohl die Emissionsanteile in die beide Halbräume als auch die Intensitätsverteilungen im Fernfeld. Die derart veränderte Abstrahlcharakteristik wirkt sich nicht nur auf die Sammeleffizienz, sondern auch auf den erzielten Sammelfaktor aus. Der Sammelfaktor wird durch das Hinzufügen des Goldspiegels für die $o1$ -Mode vermindert und für alle anderen angeregten Moden merklich erhöht (Abbildung 7.10a und 7.10c). Es ist noch anzumerken, dass aufgrund der reflektierenden Goldschicht auch bei Implementierung eines E_z -Dipols für alle Wellenlängen ein größerer Anteil der Emission in den oberen als in den unteren Halbraum abgestrahlt wird. Die Sammeleffizienz wird jedoch durch den hinzugefügten Goldspiegel bei dieser Dipolorientierung insgesamt kaum beeinflusst (Abbildung 7.10e).

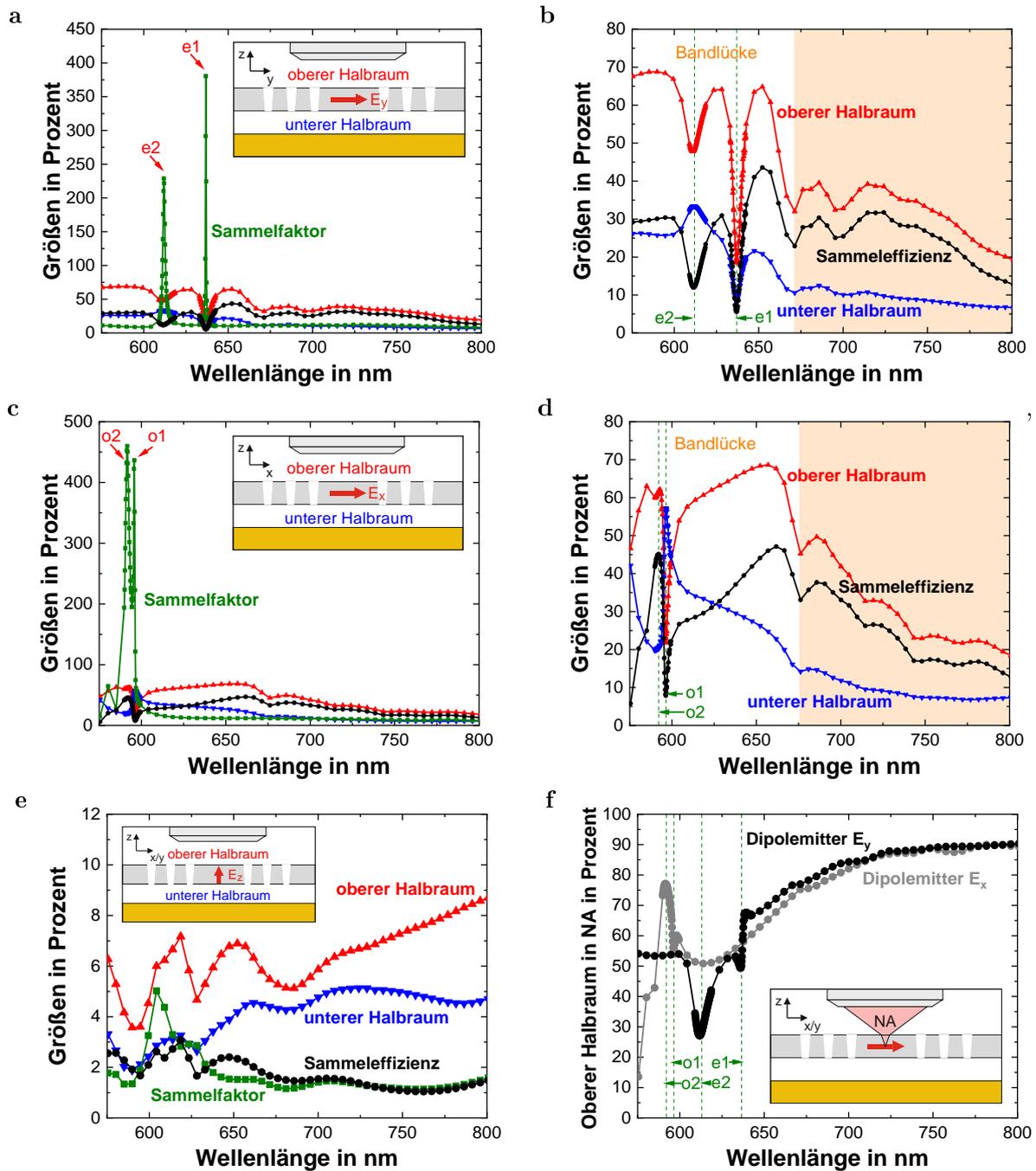


Abbildung 7.10: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M7-Resonator bei einem Goldabstand von 400 nm. (a-e) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in x -Richtung (c und d) mit einer Vergrößerung in (d) sowie für einen Dipol in z -Richtung (e). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen. (f) Anteil des durch die Ebene S transmittierten Lichts, das von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann, für einen Dipol in x -Richtung (grau) und y -Richtung (schwarz).

M3-Resonator

Auch für den optimierten M3-Resonator wurde zunächst der Abstand des Goldspiegels von der Diamantmembran variiert und bei Anregung mit einem E_y -Dipol die Sammeleffizienz, die Emissionsanteile in die beiden Halbräume und auch der Sammelfaktor bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode jeweils bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.9b dargestellt. Die Sammeleffizienz kann bei Wahl eines optimalen Abstands des Goldspiegels von 350 nm um einen Faktor 2,2 von 3,8 % auf einen Wert von 8,4 % gesteigert werden. Auch für größere Abstände liegt die erzielte Sammeleffizienz über dem Wert, der zuvor für die $e1$ -Mode des M3-Resonators ohne Goldspiegel ermittelt wurde. Für Abstände kleiner als 120 nm bricht der Anteil der aufgesammelten Photonen hingegen ein, wie bereits für die Fundamentalmode des M7-Resonators beobachtet werden konnte. Ursache für die Erhöhung der Sammeleffizienz der $e1$ -Mode bei dem optimalen Goldabstand von 350 nm ist erneut ein erhöhter Emissionsanteil in den oberen Halbraum verbunden mit einer verbesserten Intensitätsverteilung im Fernfeld.

Die weiteren Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.11 dargestellt. Der Goldspiegel wurde jeweils im für die $e1$ -Mode optimalen Abstand von 350 nm positioniert. Bei Implementierung eines E_y -Dipols wird neben der Fundamentalmode die gerade $e2$ -Mode angeregt, auf die im Folgenden jedoch nicht weiter eingegangen wird, da die Resonanzwellenlänge weiterhin außerhalb des Simulationsbereichs liegt (Abbildung 7.11a). Bei Implementierung eines E_x -Dipols werden wie gewohnt die ungeraden Moden $o1$ und $o2$ angeregt (Abbildung 7.11c). Die zugehörigen Resonanzwellenlängen und Gütefaktoren werden auch bei diesem Resonatortyp durch das Hinzufügen des Goldspiegels nicht beeinflusst, im Gegensatz zur Sammeleffizienz, die für einen in x -Richtung oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter bei ausnahmslos allen Wellenlängen erhöht wird und bei ausgewählten Wellenlängen sogar Werte bis zu 55 % aufweist (Abbildung 7.11b und 7.11d). Für die $e1$ -Mode steigt der Anteil der aufgesammelten Photonen von 3,8 % auf 8,4 %, für die $o1$ -Mode von 3,2 % auf 8,0 % und für die $o2$ -Mode von 32 % auf 47 % an.

Im Folgenden wird auch für diesen Resonatortyp die Abstrahlcharakteristik näher betrachtet. Für die $o1$ -Mode weist die Emission in den oberen Halbraum erneut einen geringeren prozentualen Anteil auf als die Emission in den unteren Halbraum. Bei allen anderen Wellenlängen überwiegt jedoch deutlich der Emissionsanteil in den oberen Halbraum mit Werten von in der Regel über 50 % und Spitzenwerten von bis zu 75 % (Abbildung 7.10b und 7.10d). Für einen in x -Richtung oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter kann der Emissionsanteil in den oberen Halbraum bei ausnahmslos allen Wellenlängen im Simulationsbereich durch Hinzufügen des Goldspiegels gesteigert werden, auch für die Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode. Darüber hinaus wird für die $e1$ -Mode sowie die $o1$ -Mode durch Hinzufügen des Goldspiegels nicht nur ein größerer Anteil der Photonen in den oberen Halbraum emittiert, sondern zusätzlich auch der jeweilige Transmissionsanteil in die numerische Apertur des Objektivs erhöht (Abbildung 7.11f). Ursache hierfür ist eine verbesserte Intensitätsverteilung im Fernfeld, die Emissionsanteile in Polarwinkel $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ werden durch den Goldspiegel jeweils erhöht und folglich können mehr Photonen durch ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden. Für die $o2$ -Mode wird dieser Anteil durch Hinzufügen des Goldspiegels zwar verringert, da aber der

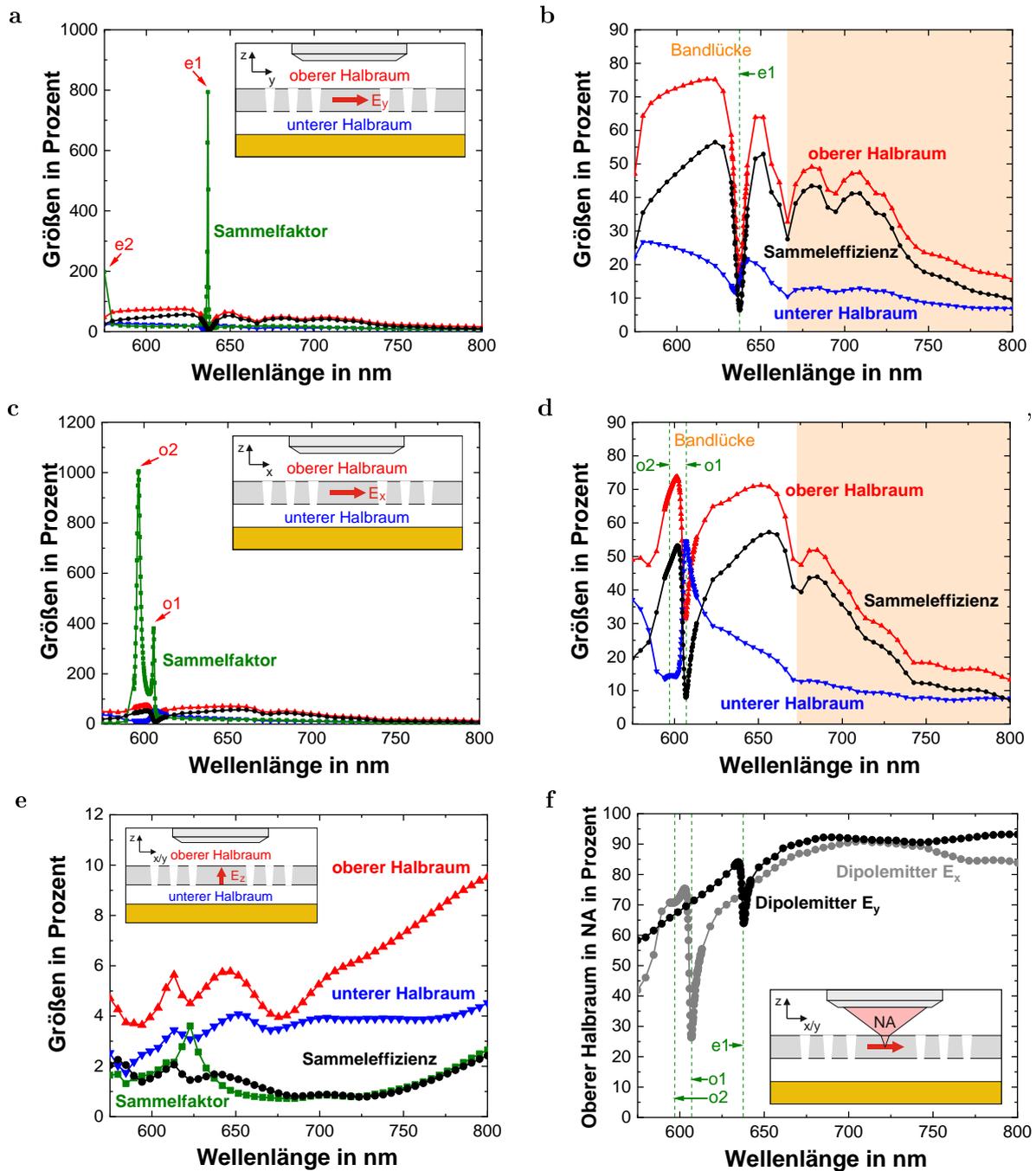


Abbildung 7.11: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M3-Resonator bei einem Goldabstand von 350 nm. (a-e) Sammeleffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in x -Richtung (c und d) mit einer Vergrößerung in (d) sowie für einen Dipol in z -Richtung (e). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen. (f) Anteil des durch die Ebene S transmittierten Lichts, das von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann, für einen Dipol in x -Richtung (grau) und y -Richtung (schwarz).

Emissionsanteil in den oberen Halbraum stärker als diese Verminderung erhöht wird, steigt insgesamt die Sammeleffizienz auch für die $o2$ -Mode an.

Insgesamt kann für einen in x -Richtung oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter bei allen Wellenlängen und insbesondere bei den Resonanzwellenlängen der drei angeregten Moden die jeweilige Abstrahlcharakteristik durch Hinzufügen des Goldspiegels merklich verbessert werden. Dies hat neben höheren Sammeleffizienzen auch höhere Sammelfaktoren zur Folge (Abbildung 7.11a und 7.11c). Es ist abschließend noch anzumerken, dass aufgrund des Goldspiegels auch bei diesem Resonatortyp bei Implementierung eines E_z -Dipols für alle Wellenlängen ein größerer Anteil der Emission in den oberen als in den unteren Halbraum abgestrahlt wird, ohne dass die Sammeleffizienz dadurch merklich beeinflusst wird (Abbildung 7.11e).

M0-Resonator

Auch für den optimierten M0-Resonator wurde der Abstand des Goldspiegels von der Diamantmembran bei Anregung mit einem E_y -Dipol variiert und die Sammeleffizienz, die Emissionsanteile in die beiden Halbräume und der Sammelfaktor bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode jeweils bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 7.9c dargestellt. Die Sammeleffizienz der Fundamentalmode kann bei Wahl eines optimalen Abstands des Goldspiegels von 300 nm um einen Faktor 1,7 von 3,4% auf einen Wert von 5,6% gesteigert werden. Allerdings liegt im Gegensatz zu den $e1$ -Moden der beiden anderen Resonatortypen nur für Abstände im Wertebereich von 150 nm bis 375 nm eine erhöhte Sammeleffizienz und ein erhöhter Sammelfaktor vor. Bei optimalem Abstand ist ferner die Emission der Fundamentalmode in den oberen Halbraum leicht erhöht um einen Faktor 1,1. Da jedoch die Sammeleffizienz um einen Faktor 1,7 gesteigert wird, reicht der optimierte Emissionsanteil in den oberen Halbraum als alleinige Begründung für die erhöhte Sammeleffizienz der $e1$ -Mode auch hier nicht aus. Wird hingegen zusätzlich die verbesserte Intensitätsverteilung im Fernfeld hin zu kleinen Polarwinkeln $\phi \leq \alpha = 51,13^\circ$ berücksichtigt, so kann die Steigerung der Sammeleffizienz vollständig erklärt werden.

Die weiteren Simulationsergebnisse sind in Abbildung 7.12 dargestellt. Der Goldspiegel wurde jeweils im für die $e1$ -Mode optimalen Abstand von 300 nm positioniert. Bei Betrachtung der Ergebnisse sind zunächst zwei zentrale Dinge auffällig: Zum einen wird bei Implementierung eines E_x -Dipols erstmals eine ungerade Mode am Rande der photonischen Bandlücke angeregt (Abbildung 7.12c). Diese $o1$ -Mode war zuvor bei der Untersuchung des M0-Resonator ohne Goldspiegel noch im Luftband, wie für Donatormoden üblich, gebunden. Des Weiteren weist die bei Implementierung eines E_y -Dipols angeregte Fundamentalmode zwar weiterhin den gleichen Gütefaktor auf, allerdings ist die Resonanzwellenlänge dieser Mode bei hinzugefügtem Goldspiegels um 7 nm blauverschoben. Die Gitterkonstante müsste folglich von 237 nm auf 239 nm angepasst werden, um erneut Resonanz mit der Nullphononenlinie eines NV-Zentrums zu erreichen. Sowohl das Absteigen der $o1$ -Mode aus dem Luftband als auch die Veränderung der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode lassen darauf schließen, dass der Goldspiegel bei einem M0-Resonator nicht nur Photonen reflektiert, sondern ebenso wie bei den anderen beiden Resonatortypen zusätzlich die Feldverteilung beeinflusst.

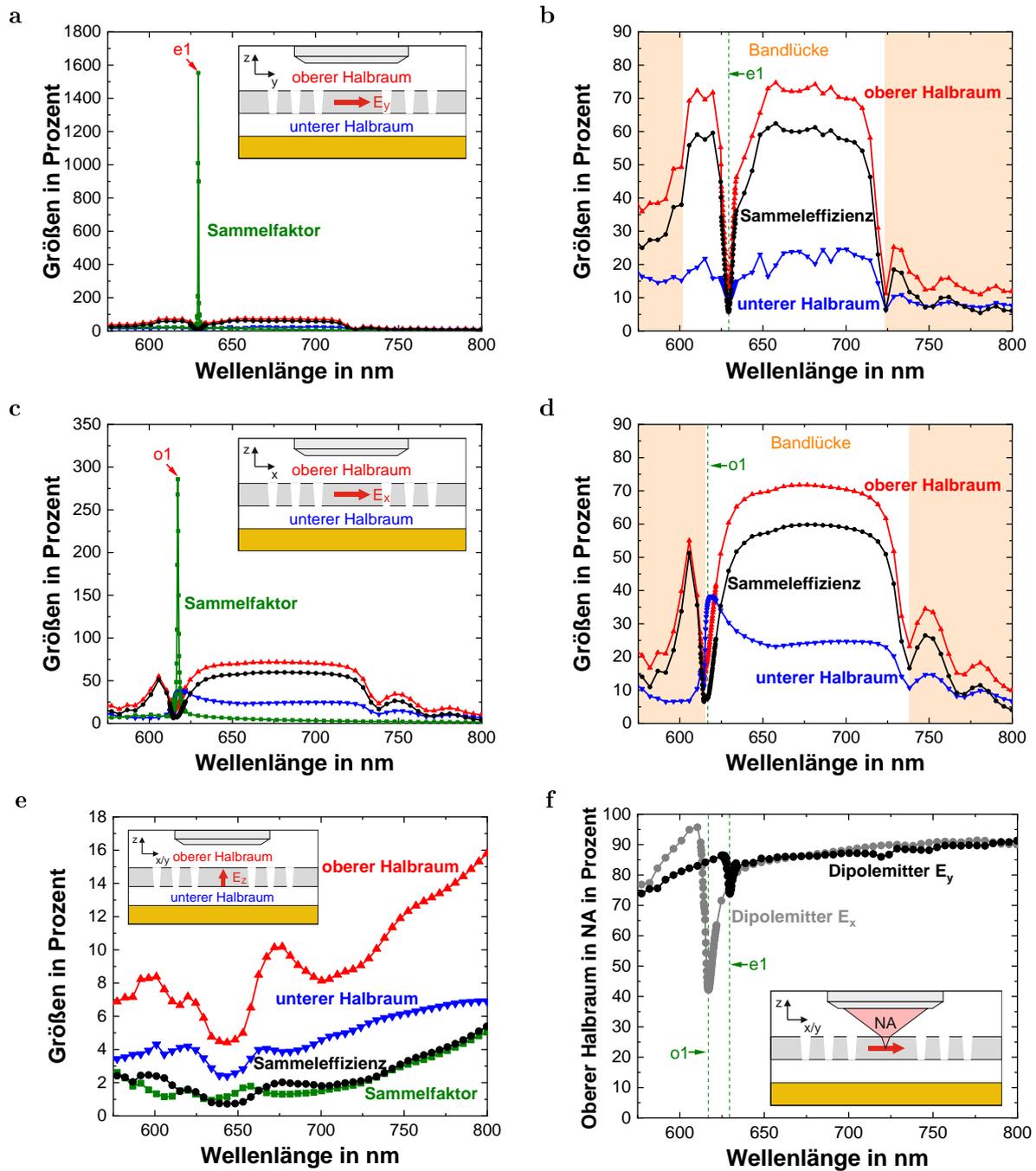


Abbildung 7.12: Simulation der Auskopplung von Licht aus einem M0-Resonator bei einem Goldabstand von 300 nm. (a-e) Sammeffizienz (schwarz), Sammelfaktor (grün), Anteil der in den oberen Halbraum (rot) und Anteil der in den unteren Halbraum (blau) emittierten Photonen für einen Dipol in y -Richtung (a und b) mit einer Vergrößerung in (b), für einen Dipol in x -Richtung (c und d) mit einer Vergrößerung in (d) sowie für einen Dipol in z -Richtung (e). Der Wellenlängenbereich außerhalb der photonischen Bandlücke ist jeweils orange hinterlegt. Die Moden sind mit den in Kapitel 4 eingeführten Bezeichnungen versehen. (f) Anteil des durch die Ebene S transmittierten Lichts, das von einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,8 aufgesammelt werden kann, für einen Dipol in x -Richtung (grau) und y -Richtung (schwarz).

Die Sammeffizienz wird für einen in x -Richtung oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter bei Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke im Vergleich zum Resonator ohne Goldspiegel mehr als verdoppelt und erreicht Werte von bis zu 60 % (Abbildung 7.12b und 7.12d). Speziell für die $e1$ -Mode steigt der Anteil der aufgesammelten Photonen von 3,4 % auf 5,6 % an. Um die erhöhten Werte für die Sammeffizienz erklären zu können, muss erneut die Abstrahlcharakteristik näher betrachtet werden. Hierbei fällt zunächst auf, dass der Anteil der Emission in den oberen Halbraum erwartungsgemäß stets größer ist als der Anteil der Emission in den unteren Halbraum. Eine einzige Ausnahme stellt erneut die $o1$ -Mode dar mit einem Emissionsanteil von 37 % in den unteren Halbraum und lediglich 21 % in den oberen Halbraum. Wird mit dem M0-Resonator ohne Goldspiegel verglichen, so kann der Emissionsanteil in den oberen Halbraum jedoch für ausnahmslos alle Wellenlängen im Simulationsbereich gesteigert werden, selbst für die Resonanzwellenlänge der $o1$ -Mode. Die Zunahme des Emissionsanteils in den oberen Halbraum durch Hinzufügen des Goldspiegels kann jedoch die Erhöhung der Sammeffizienz nicht vollständig erklären, wie für die $e1$ -Mode bereits angesprochen wurde. Für einen in x -Richtung oder auch in y -Richtung orientierten Dipolemitter wird bei allen Wellenlängen durch Hinzufügen des Goldspiegels jedoch nicht nur ein größerer Anteil der Photonen in den oberen Halbraum emittiert, sondern zusätzlich der jeweilige Transmissionsanteil in die numerische Apertur des Objektivs erhöht (Abbildung 7.12f). Insgesamt kann so die erhöhte Sammeffizienz erklärt werden. Die verbesserte Abstrahlcharakteristik hat neben höheren Sammeffizienzen ferner höhere Sammelfaktoren zur Folge. Die $e1$ -Mode erreicht mit 1550 % einen neuen Höchstwert unter allen bislang in Rahmen dieser Arbeit simulierten Resonatormoden (Abbildung 7.12a). Es ist abschließend auch für den M0-Resonator anzumerken, dass aufgrund des Goldspiegels auch bei Implementierung eines E_z -Dipols für alle Wellenlängen ein größerer Anteil der Emission in den oberen als in den unteren Halbraum abgestrahlt wird, die Sammeffizienz jedoch durch den Goldspiegel nicht merklich beeinflusst wird (Abbildung 7.12e).

7.3.2 Herstellung eines optimierten Probensystems mit einem Goldspiegel

Um die Auskopplung von Licht aus einer photonischen Kristallstruktur zu verbessern, soll im Folgenden ein Goldspiegel im optimalen Abstand zur Oberfläche der Diamantmembran positioniert werden. Zwischen den beiden Schichten soll Luft vorliegen, da die Kopplung an plasmonische Oberflächenmoden des Goldspiegels wie bereits angesprochen wurde durch ein Zwischenmedium mit einem möglichst geringem Brechungsindex minimiert wird und ferner an die Diamantmembran angrenzende Stoffe mit Brechungsindex größer als eins die Gütefaktoren der Moden negativ beeinflussen würden. Zwei Möglichkeiten zur Realisierung eines solchen Probensystems sind prinzipiell denkbar. Zum einen kann ein extern befestigter und nicht mit der Diamantmembran verbundener Goldspiegel eingesetzt werden, der mithilfe eines Positioniersystems an die Oberfläche des Diamantfilms beliebig nahe herangefahren werden kann. Die Umsetzbarkeit dieser Methode wurde für optische Antennen bereits demonstriert [268]. Als reflektierende Schicht wurde hierzu die mit Gold beschichtete Querschnittsfläche einer optischen Faser verwendet. Als alternative Möglichkeit kann der Goldspiegel auch im optimalen Abstand von der Diamantoberfläche fest

mit dem Probensystem verbunden werden.

Das Probensystem soll darüber hinaus auch die spätere Untersuchung von inkorporierten NV-Zentren bei kryogenen Temperaturen ermöglichen. Da die in den verfügbaren Kryostaten eingebauten Positioniereinheiten bereits für die Ausrichtung der Probe relativ zum Objektiv oder auch für die Positionierung der Mikrowellenantenne benötigt werden (siehe Kapitel 5), kommt zur Gewährleistung eines optimalen Abstands für das im Folgenden umgesetzte Probensystem nur eine feste Verbindung des Goldspiegels mit der Diamantmembran in Frage. Zu beachten hierbei ist, dass der Abstand zwischen Spiegel und Diamantoberfläche bei einem fest verbundenen Probensystem jedoch prinzipiell nur für die Fundamentalmode einer der untersuchten Resonatortypen optimal gewählt werden kann.

Die Herausforderung bei der Herstellung eines derartigen Probensystems ist die Realisierung eines Luftspalts von wenigen hundert Nanometern Dicke zwischen Goldspiegel und Diamantmembran. Dazu ist insbesondere eine stabile Verbindung zwischen den beiden Schichten erforderlich, um die Konstanz des Abstands etwa beim Abkühlen in einem Kryostaten zu gewährleisten. Die dabei tolerierbaren Fabrikationsabweichungen sind vom Resonatortyp abhängig. Für einen M7-Resonator hat eine Abweichung des Abstands von bis zu ± 100 nm kaum Auswirkungen auf die optimierte Sammeleffizienz (Abbildung 7.9a). Empfindlicher gegenüber fabrikationsbedingten Abweichungen des Abstandes reagieren hingegen die beiden optimierten Resonatortypen. Bereits kleinste Abweichungen vom optimalen Abstand bewirken bei der $e1$ -Mode des M3-Resonators sowie des M0-Resonators eine merkliche Verminderung der Sammeleffizienz (Abbildung 7.9b und 7.9c). Eine Abweichung um ± 100 nm vom optimalen Abstand würde für die Sammeleffizienz der Fundamentalmode des M0-Resonators den positiven Effekt des Goldspiegels sogar vollständig zunichte machen. Insbesondere sollte bei allen Resonatortypen sichergestellt werden, dass der Abstand zwischen Goldspiegel und Diamantmembran nicht kleiner als 150 nm wird, da die erzielte Sammeleffizienz für kleinere Abstände sogar geringer ist als ohne reflektierende Schicht.

Herstellungsprozess mittels eines Gold-Gold-Verbindungsverfahrens

Da als reflektierende Schicht ein Goldspiegel eingesetzt wird, bietet es sich an, die Diamantmembran mittels eines Gold-Gold-Verbindungsverfahrens auf dem Spiegel zu befestigen. Dazu wird der in Kapitel 6 beschriebene Herstellungsprozess eines dünnen, freistehenden Diamantfilms modifiziert und insbesondere um das Verbindungsverfahren ergänzt. Eine Übersicht über den im Folgenden erläuterten Fabrikationsprozess ist in Abbildung 7.13 gegeben.

Der Diamantfilm ist wie bereits in Kapitel 6 dargelegt wurde auf einem Siliziumsubstrat befestigt, das die Handhabbarkeit der Probe auch bei einer wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran weiterhin gewährleistet. Der Diamantfilm wurde bereits von der Oberseite her mit dem bereits beschriebenen RIE-Prozess auf eine Dicke von $3 \mu\text{m}$ ausgedünnt.

Nach Reinigung des Probensystems in einer Mischung aus Schwefelsäure (H_2SO_4) und Wasserstoffperoxid (H_2O_2) im Mischungsverhältnis 1 : 1 wird auf die Probenoberfläche eine Schicht aus Fotolack (*AZ 6632*, Clariant) mittels einer Lackschleuder (*Delta 80BM Gyrset*, Süss) aufgebracht. Die Lackschicht wird nach einem kurzen Aushärten für 50 s bei 110°C viermal für

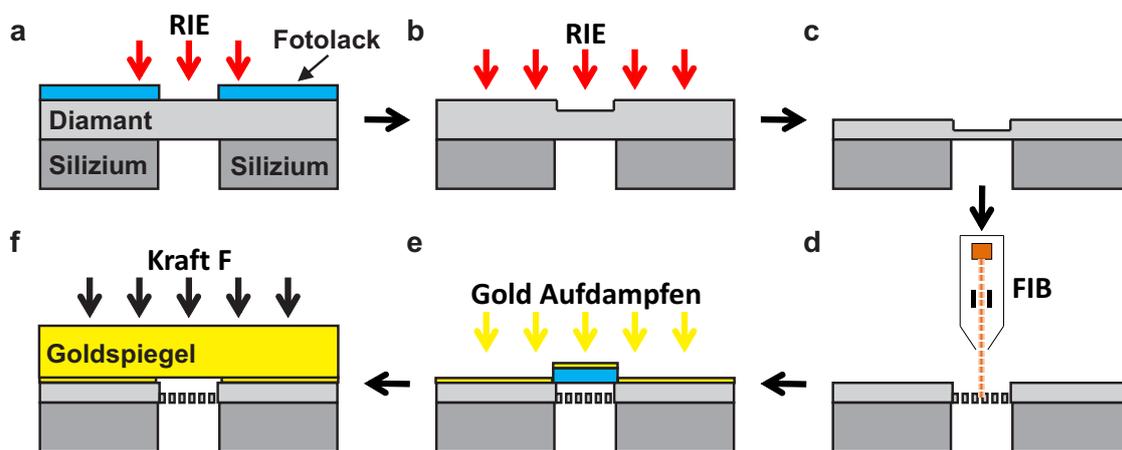


Abbildung 7.13: Schematische Darstellung des Herstellungsprozesses. (a) Die auf einem Siliziumsubstrat befestigte Diamantmembran wurde bereits auf eine Dicke von $3\ \mu\text{m}$ ausgedünnt. Mithilfe eines Fotolithografieprozesses wird eine Lackschicht (blau) aufgebracht und die Membran im Anschluss in einem RIE-Prozesses von der Oberseite her um $250\ \text{nm}$ selektiv vertieft. (b und c) Nach Entfernen der Lackschicht wird die endgültige Schichtdicke durch RIE erreicht und (d) zweidimensionale photonische Kristalle per FIB-Strukturierung darin hergestellt. Nach erfolgter Nachbehandlung wird (e) der freistehende Bereich des Diamanten mit einer Schicht aus Fotolack (blau) bedeckt und die gesamte Probenoberfläche mit einer $100\ \text{nm}$ dicken Goldschicht bedampft. In einem Lift-Off-Prozess wird der Fotolack und das darauf aufgedampfte Gold entfernt. (f) Die Probe wird auf einem Goldspiegel positioniert und in einem Substratbonder bei einer Temperatur von $300\ ^\circ\text{C}$ und einer Kraft von $150\ \text{N}$ mit dem Goldspiegel fest verbunden.

eine Zeitspanne von jeweils $1,8\ \text{s}$ in einem Belichter (*Double Side Maskaligner 620*, EVG) mit einer Lithografiemaske versehen aktiviert. Zwischen den einzelnen Belichtungsschritten wird eine Wartezeit von jeweils $60\ \text{s}$ eingehalten, um eine durch den Energieeintrag hervorgerufene Blasenbildung im Fotolack zu vermeiden. Nach $50\ \text{s}$ Entwicklungszeit in einer speziellen Flüssigkeit (*AZ 826 MIF*, Merck) bleibt der belichtete Teil des Photolacks erhalten, während der durch die Lithografiemaske abgeschattete Teil in der Entwicklerflüssigkeit aufgelöst wird. Der auf der Probenoberfläche verbliebene Fotolack wird anschließend für $50\ \text{s}$ bei $125\ ^\circ\text{C}$ final ausgehärtet.

Die außergewöhnliche Temperaturbeständigkeit des eingesetzten Fotolacks erlaubt die anschließende RIE-Prozessierung der Probe. Der Diamantfilm wird von der Oberseite her in dem lackfreien Bereich um $250\ \text{nm}$ selektiv vertieft (Abbildung 7.14a und 7.14b). Die Genauigkeit der Ätzrate im RIE-Prozesses liegt bei $\pm 5\%$, daher kann der tatsächliche Abtrag um bis zu $\pm 12\ \text{nm}$ abweichen. Die Lackmaske wird darauffolgend in einem erneuten Säurebad aus Schwefelsäure (H_2SO_4) und Wasserstoffperoxid (H_2O_2) rückstandsfrei entfernt. Im Anschluss daran wird die selektiv vertiefte Diamantmembran auf die endgültige Schichtdicke ausgedünnt und erneut gereinigt. Mithilfe der in Kapitel 6 dargelegten Charakterisierungsmethoden werden defektfreie Bereiche passender Schichtdicke ausgewählt. An geeigneten Positionen werden anschließend die zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen mittels FIB-Strukturierung hergestellt (Ab-

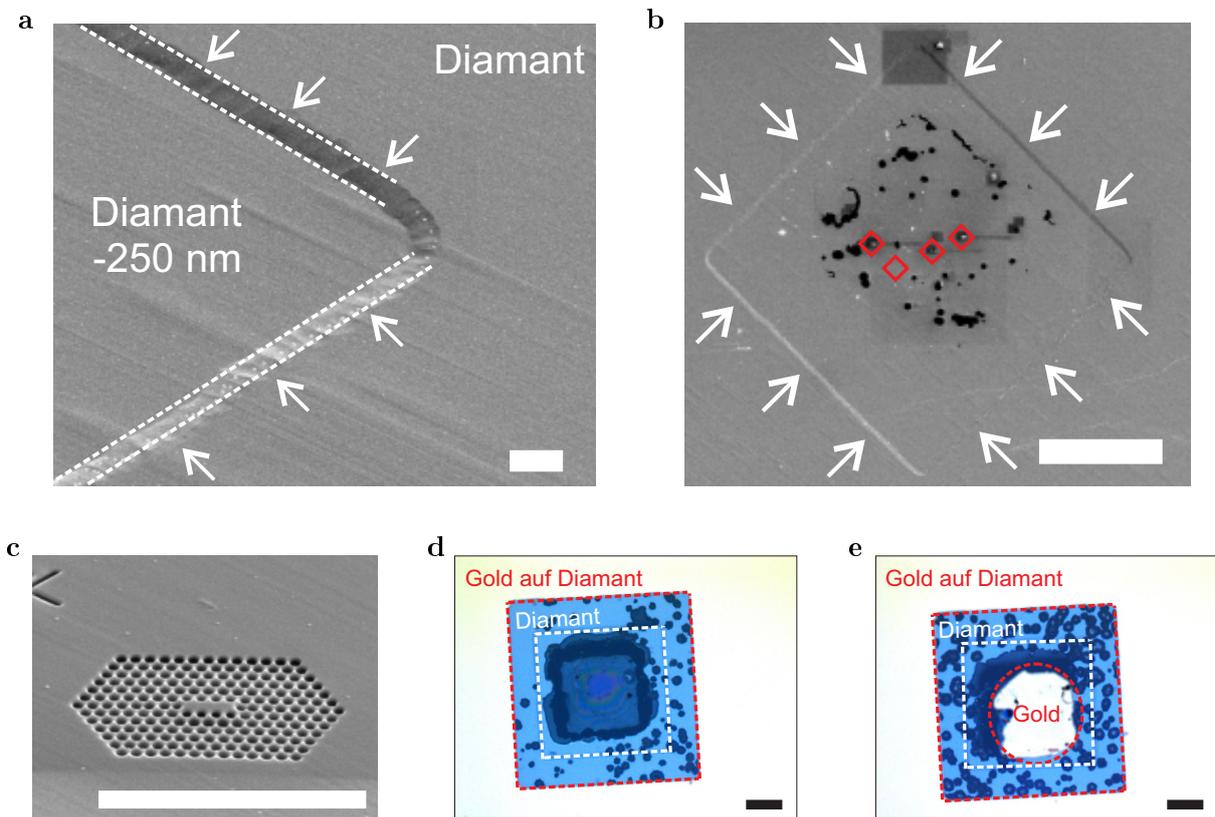


Abbildung 7.14: Optimisiertes Probensystem. (a und b) REM-Bilder einer Diamantmembran, die von der Oberseite her in einem RIE-Prozess selektiv um 250 nm vertieft wurde. Die Kanten hin zu dem nicht durch den Fotolack geschützten, vertieften Bereich des Diamantfilms sind deutlich zu erkennen. (b) Die Diamantmembran ist bei Erreichen der finalen Schichtdicke an einigen Stellen so dünn, dass erste Löcher an den dünnsten Stellen entstehen. An defektfreien Stellen geeigneter Schichtdicke wurden nach Durchführung der Charakterisierungsmethoden vier M3-Resonatoren hergestellt, deren Position jeweils mit einer roten Raute gekennzeichnet ist. (c) Die Resonatoren weisen regelmäßige Lochmuster und kein Einsinken auf. (d und e) Mikroskopaufnahmen zweier mit Gold bedampfter Diamantmembranen jeweils nach dem Lift-Off-Prozess. Der in vorhergegangenen Prozessschritten von der Oberseite her selektiv vertiefte Teil der Membran ist in weiß umrandet. (d) Bei gelungener Prozessierung ist die Probenoberfläche mit Gold bedeckt, während die freistehenden Teile des Diamantfilms frei von Gold sind. (e) Selbst bei einer dünnen aufgedampften Goldschicht kann der Lift-Off-Prozess in seltenen Fällen misslingen, Goldreste bedecken die Membran hier noch teilweise. Die eingezeichneten Maßstabsleisten entsprechen einer Länge von $5\ \mu\text{m}$ (a und c) bzw. $50\ \mu\text{m}$ für die restlichen Abbildungen.

bildung 7.14b und 7.14c) und nach erfolgter Nachbehandlung optisch charakterisiert.

Für die Umsetzung des Gold-Gold-Verbindungsverfahrens muss die Diamantoberfläche zunächst mit einer Goldschicht überzogen werden. Um hierbei eine unerwünschte Goldabscheidung in den Bereichen der hergestellten Resonatoren zu vermeiden, wird der freistehende Teil des Diamanten mit einer Lackschicht geschützt. Der verwendete Fotolack (*AZ nLOF 2035*, Merck) ist ein

spezieller Negativlack, der bei geeigneter Belichtung einen Unterschnitt aufweist und so den späteren Lift-Off-Prozess erleichtert. Während der Fotolack auf den 3 μm dicken Diamantfilm aufgeschleudert werden konnte, würde die gleiche Prozessierung die mittlerweile nur noch wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembranen zerstören. Daher wird der Fotolack hier mithilfe eines Sprühbelackers (*Advanced Resist Processing System 101*, EVG) in einem speziell hierfür entwickelten Prozess in zwei aufeinanderfolgenden Durchgängen aufgebracht, um letztendlich eine Lackdicke von 7 μm zu erzielen. Nach einem kurzen Aushärteschritt für 60 s bei 110 °C wird der Fotolack für 15 s belichtet und anschließend für 150 s in der zuvor beschriebenen Flüssigkeit entwickelt. Um Entwicklerreste von der Probenoberfläche zu entfernen und darüber hinaus die Anhaftung der Metalle an der Diamantoberfläche im anschließenden Evaporierprozess zu unterstützen, wird die Probe zusätzlich in einem Plasmaverascher (*Pico UHP*, Diener Elektronik) für 60 s in einem Sauerstoffplasma bei einer Leistung von 50 W nachbehandelt.

In einer Elektronenstrahl-Aufdampfanlage (*Classic 500 L*, Pfeiffer) wird ein 100 nm dicker Goldfilm auf die Diamantmembran selektiv aufgebracht. Der Abstand von 80 cm zwischen Goldtiegel und Probe erlaubt die nahezu senkrechte Bedampfung, die die Anhaftung von Gold an den Kanten des Fotolacks minimiert. Die Schichtdicke des aufgetragenen Goldfilms wird während des Prozesses durch einen im System integrierten Schwingquartz mit einer durch die Kalibrierung bedingten Genauigkeit von wenigen Nanometern überwacht. Da Gold sehr schlecht an Diamant haftet, muss aus technischen Gründen zusätzlich eine wenige Nanometer dicke Chromschicht auf die Diamantoberfläche aufgebracht werden, die als Adhäsionsschicht zwischen Diamant und Gold wirkt. Der Lack und somit auch die auf dem Lackfilm aufgedampften Metallpartikel werden anschließend in einem Lift-Off-Prozess in Dimethylsulfoxid ($\text{C}_2\text{H}_6\text{OS}$) entfernt. Die resultierende Diamantmembran ist folglich mit einer 100 nm dicken Goldschicht überzogen, aber im Bereich der Resonatoren nur von Luft umgeben (Abbildung 7.14d).

Als Goldspiegel wird ein poliertes und mit einem 1 μm dicken Goldfilm beschichtetes Siliziumstück verwendet. Die Diamantprobe wird auf diesem Goldspiegel positioniert und in einem Substratbinder (*Wafer Bonding System 501*, EVG) im Vakuum auf 300 °C erhitzt. Für 2 h wird bei dieser Temperatur eine Kraft von 150 N auf das Probensystem ausgeübt, um die Gold-Gold-Verbindungsschicht auszubilden. Das Resultat ist eine wenige hundert Nanometer dicke, von Luft umgebene Diamantmembran mit darin hergestellten Resonatoren, die sich zuverlässig mit dem Goldspiegel verbunden in einem festen Abstand von 350 nm über der reflektierenden Goldschicht befindet. Soll das hergestellte Probensystem auf einen anderen Resonatortyp abgestimmt werden, so kann beispielsweise für den M0-Resonator die Diamantmembran um lediglich 200 nm selektiv von der Oberseite her vertieft werden, um so nach dem Gold-Gold-Verbindungsprozess einen Gesamtabstand von lediglich 300 nm zwischen Diamantoberfläche und Goldspiegel zu erhalten. Eine alternative Reduzierung der Dicke der aufgedampften Goldschicht ist nicht zu empfehlen, da Vorversuche gezeigt haben, dass eine dünnere Goldschicht beispielsweise mit 50 nm Dicke keine zuverlässige und stabile Gold-Gold-Verbindung hervorruft.

Abschließend stellt sich noch die Frage, warum im beschriebenen Herstellungsprozess die Diamantmembran derart aufwändig selektiv von der Oberseite her vertieft werden musste, statt naheliegenderweise direkt einen 350 nm dicken Goldfilm aufzudampfen und somit ebenfalls den

gewünschten Abstand zwischen Diamantoberfläche und Goldspiegel zu erzielen. Der Grund hierfür liegt im erforderlichen Lift-Off-Prozess. Die Ablagerung von Gold an den Kanten der Lack-schicht kann während des Aufdampfens des Metallfilms nicht vollständig vermieden werden, trotz des zuvor prozessierten Unterschnitts der $7\ \mu\text{m}$ dicken Lackschicht und trotz der Verwendung einer speziellen Geometrie mit nahezu senkrechter Bedampfung. Je dicker die aufgedampfte Goldschicht ist, desto dicker wird auch die Ablagerung an den Kanten des Lackfilms und desto schwieriger wird folglich der anschließende Lift-Off-Prozess. In Testprozessen konnte zwar der Lift-Off-Prozess auch bei einer $350\ \text{nm}$ dicken aufgedampften Goldschicht erfolgreich durchgeführt werden, allerdings nur mit Unterstützung durch Ultraschall. Da jedoch die wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembranen im Ultraschallbad unmittelbar zerstört werden würden, muss die Dicke des aufgedampften Goldfilms so klein gewählt werden, dass ein Lift-Off ohne Ultraschall ermöglicht wird. Dies gelingt für einen $100\ \text{nm}$ dicken Goldfilm bis auf wenige Ausnahmen zuverlässig (Abbildung 7.14d und 7.14e). Um dennoch einen Abstand von $300\ \text{nm}$ für M0-Resonatoren, $350\ \text{nm}$ für M3-Resonatoren oder $400\ \text{nm}$ für M7-Resonatoren zwischen Diamantfilm und Goldspiegel zu erzielen, muss die Diamantmembran zusätzlich durch die beschriebene Prozessierung selektiv vertieft werden.

7.4 Zusammenfassung und Ausblick

Im vorliegenden Kapitel wurde zunächst die Simulationsmethodik zur Untersuchung der Abstrahlung von Licht aus Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in Diamant dargelegt. Die Implementierung breitbandiger Dipolemitter ermöglichte die Modellierung der Emission eines im Resonator positionierten NV-Zentrums, auf dessen Nullphononenlinie die Fundamentalmode des jeweiligen Resonatortyps abgestimmt wurde. Zentrale Kenngrößen der Auskopplung des abgestrahlten Lichts wie etwa die Emissionsanteile in die beiden Halbräume oder auch die Sammeleffizienz konnten für die untersuchten Resonatortypen jeweils wellenlängenabhängig in einem breitbandigen Spektralbereich ermittelt werden.

Mithilfe der durchgeführten Simulationen konnte insbesondere gezeigt werden, dass die Sammeleffizienz bei Annahme eines vertikal über der Diamantoberfläche positionierten Objektivs bei den Resonanzwellenlängen der Moden im Allgemeinen deutliche Einbrüche zeigt. Insbesondere für die Fundamentalmode, die unter allen Moden eines Resonators den mit Abstand größten Gütefaktor und somit die beste Eignung für eine potenzielle Emitter-Resonator-Kopplung aufweist, nimmt die Sammeleffizienz mit Werten von $3,4\%$ für den M0-Resonator, $3,8\%$ für den M3-Resonator und $3,9\%$ für den M7-Resonator jeweils ihr globales Minimum an, wohingegen zumindest für Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke ansonsten deutlich bessere Werte um 25% erzielt werden. Die in diesem Rahmen ebenfalls durchgeführten Analysen der Abstrahlcharakteristik auf Basis der in den Simulationen ermittelten weiteren Auskopplungsgrößen ermöglichten darüber hinaus auch die vollständige Erklärung des für den jeweiligen Resonatortyp spezifischen, wellenlängenabhängigen Verhaltens der Sammeleffizienz.

Durch Implementierung eines unterhalb der Diamantmembran positionierten Goldspiegels kann

te die simulierte Sammeleffizienz global und insbesondere auch bei den Resonanzwellenlängen der Fundamentalmoden um einen Faktor 1,5 für den M7-Resonator, 1,7 für den M0-Resonator und 2,2 für den M3-Resonator gesteigert werden, ohne die Gütefaktoren der Moden dadurch negativ zu beeinflussen. Mithilfe der dargelegten Analysen der wellenlängenabhängigen Abstrahlcharakteristik konnte ferner gezeigt werden, dass die Funktionsweise des hinzugefügten Goldspiegels nicht alleinig auf der Reflexion von in den unteren Halbraum abgestrahlten Photonen beruht. Die hinzugefügte Goldschicht bewirkt sowohl eine Optimierung der Emissionsanteile in die beiden Halbräume als auch eine Veränderung der Intensitätsverteilungen im Fernfeld. Darüber hinaus wurde in diesem Kapitel die Herstellung eines derartigen hinsichtlich der Sammeleffizienz optimierten Probensystems dargelegt. Dazu wurde der bereits in Kapitel 6 beschriebene Fabrikationsprozess dünner freistehender Diamantmembranen mit darin per FIB-Strukturierung hergestellter Resonatoren leicht modifiziert und zusätzlich um ein Gold-Gold-Verbindungsverfahren ergänzt. Die dargelegten Nanofabrikationstechniken erlaubten die Anbringung eines Goldspiegels in dem in den Simulationen zuvor ermittelten optimalen Abstand zur Diamantoberfläche. Gleichzeitig konnten die eingesetzten Techniken sicherstellen, dass die freistehenden Teile der Diamantmembranen frei von Gold und folglich weiterhin vollständig von Luft umgeben sind.

Die dargelegte Herstellungsmethodik zur Optimierung eines hybriden Probensystems durch Hinzufügen eines Goldspiegels könnte in Zukunft auch auf ein Volldiamantsystem adaptiert werden. Dazu könnte zunächst mittels des beschriebenen Fotolithografieprozesses auf eine Seite des Diamantfilms die Fotolackschicht aufgebracht, belichtet und entwickelt werden. Im beschriebenen RIE-Prozess würde der lackfreie Teil dieser Seite der Diamantmembran um 250 nm selektiv vertieft und die Gegenseite der Diamantmembran anschließend mithilfe einer strukturierten Glasplatte als Maskierung auf die endgültige Schichtdicke ausgedünnt werden. Nach erfolgter FIB-Strukturierung der Resonatoren könnte die Goldschicht mit der dargelegten Methodik auf die selektiv vertiefte Seite des Diamantfilms aufgebracht und schließlich die Diamantoberfläche auf dem Goldspiegel durch den entwickelten Gold-Gold-Verbindungsprozess befestigt werden. Alle hierfür erforderlichen Nanofabrikationsmethoden wurden im vorliegenden Kapitel oder bereits in Kapitel 6 dargelegt und deren Umsetzbarkeit zumindest für das hybride Probensystem erfolgreich demonstriert. Ein Volldiamantsystem hätte hier zukünftig gegenüber einem hybriden Probensystem den Vorteil, dass die FIB-Strukturierung von beiden Seiten der Diamantmembran durchgeführt werden könnte. Erfolgt die Herstellung der Löcher der photonischen Kristallstrukturen in der wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran von der Rückseite her, so zeigen später im fertigen optimierten Probensystem die breiteren Öffnungen der kegelförmigen Luftlöcher in Richtung Goldspiegel, ansonsten die schmalere Öffnungen. Das Objektiv könnte auf der jeweiligen Gegenseite positioniert und in beiden Fällen hinreichend nahe an die Probenoberfläche herangefahren werden.

Die Gold-Gold-Verbindungsschicht zeichnet sich zwar durch eine sehr gute mechanische Stabilität aus und weist darüber hinaus auch eine hervorragende Tieftemperaturbeständigkeit getestet bis 4 K auf, die uneingeschränkte Eignung für Temperaturen über 400 °C ist jedoch nicht gegeben. Sowohl bei Testproben als auch bei einer bereits mit Nanostrukturen versehenen Diamantprobe zeigte sich, dass bei derart hohen Temperaturen Goldpartikel von der Diamantoberfläche abplat-

zen, die zum einen die Gold-Gold-Verbindungsschicht unbrauchbar machen und darüber hinaus sogar die wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembranen zerstören könnten. Zur Durchführung der im nachfolgenden Kapitel beschriebenen Experimente war jedoch ein mehrmaliges Erhitzen des verwendeten Probensystems sogar auf Temperaturen von 525°C erforderlich. Daher musste trotz der in den Simulationen vorhergesagten Steigerung der Sammeleffizienz und trotz der erfolgreich demonstrierten Herstellbarkeit des optimierten Probensystems für die in nachfolgenden Kapiteln beschriebenen Experimente auf das Hinzufügen eines Goldspiegels verzichtet werden. Sollten jedoch Experimente durchgeführt werden, bei denen der Fokus auf dem Aufsammeln von möglichst jedem einzelnen von einem Farbzentrum emittierten Photon liegt und ferner ein Erhitzen der optimierten Proben nicht erforderlich ist, so kann das entwickelte optimierte Probensystem in Zukunft in derartigen Experimenten gewinnbringend eingesetzt werden.

8 Kopplung von NV-Zentren an eine Resonatormode

In Kapitel 6 wurde der Fabrikationsprozess von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen in einem hybriden Probensystem ausführlich beschrieben. Da als Ausgangsmaterial hochreiner Diamant (*electronic grade* Qualität, ElementSix) verwendet wurde, sind in der wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran und insbesondere auch in den Resonatorflächen nach erfolgter Herstellung und optischer Charakterisierung der Nanostrukturen zunächst noch keine Farbzentren vorhanden.

In diesem Kapitel wird die Erzeugung von NV-Zentren in den bereits hergestellten und charakterisierten Resonatoren dargelegt. Dazu wird zunächst die eingesetzte hochauflösende Implantationstechnik erläutert, die durch Maskierung der Diamantoberfläche mithilfe einer strukturierten AFM-Spitze die zielgenaue Implantation von Stickstoffionen in die Resonatorflächen bei gleichzeitiger Abschirmung der umliegenden Bereiche der Diamantmembran ermöglicht. Umfangreiche Nachbehandlungsmaßnahmen gewährleisten in allen implantierten Resonatoren die Erzeugung von NV-Zentren mit durch spektrale Diffusion auf Halbwertsbreiten von wenigen hundert Gigahertz verbreiterten Nullphononenlinien. Zwei sich gegenseitig ergänzende Abstimmungstechniken erlauben im Anschluss die deterministische Abstimmung der Fundamentalmode eines M0-Resonators mit Gütefaktor $Q = 2060$ auf die Nullphononenlinie der in der Resonatorfläche erzeugten NV-Zentren, die in Resonanz mit der Mode deutlich veränderte Emissionseigenschaften aufweisen. Analysen der Intensitätsverteilung im Emissionsspektrum ermöglichen darüber hinaus die Bestimmung des Kopplungsfaktors der spontanen Emission in Resonanz zu $\beta^* = 18,7\%$ sowie des generalisierten Purcell-Faktors zu $F^* = 0,224$. Die Anwendung des in Kapitel 3 eingeführten Ratengleichungsmodells liefert durch Deduktion der für die Modellierung benötigten NV-Emissionsparameter aus dem abgeschätzten reinen NV-Spektrum zusätzlich den theoretisch zu erwartenden Purcell-Faktor, der gut mit dem ermittelten experimentellen Wert übereinstimmt. Weitere Untersuchungen mithilfe des eingeführten Modells geben abschließend einen tieferen Einblick in die Limitierungen des erreichbaren Purcell-Faktors und zeigen Beschränkungen sowohl durch Parameter der NV-Zentren als auch der Resonatormode auf.

8.1 Implantation von NV-Zentren in Resonatoren

Das Ziel im Folgenden ist, ein NV-Zentrum möglichst im Feldmaximum einer Mode eines im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Resonators zu erzeugen. Dazu muss zunächst an diesem

Ort im Diamantgitter ein Stickstoffatom vorhanden sein, das zusammen mit einer Fehlstelle zu einem NV-Zentrum aktiviert werden kann (siehe Kapitel 2). Da als Ausgangsmaterial für die umgesetzten Probensysteme hochreine Diamantfilme verwendet wurden, muss Stickstoff aktiv in die Resonatoren einbracht werden. Dazu wird ein in atomarer oder molekularer Form vorliegendes Gasatom ionisiert und beschleunigt, um mit hoher Energie auf die Diamantoberfläche zu treffen. Das Stickstoffion dringt daraufhin in den Diamanten ein und wird in das Kristallgitter als Fremdatom eingebaut. Dieser Vorgang wird als *Implantieren* bezeichnet.

Zur Stickstoffimplantation können zwei Ansätze unterschieden werden. Zum einen kann der Diamantfilm großflächig mit Stickstoff beschossen werden, um so per Zufall ein NV-Zentrum in einem Resonator zu erhalten. Wird jedoch pro photonischer Kristallstruktur mit einer Fläche von hier etwa $8\ \mu\text{m} \times 6\ \mu\text{m}$ ein einzelnes implantiertes NV-Zentrum angestrebt, so wäre die Wahrscheinlichkeit, dieses Farbzentrum in der abgeschätzten Resonatorfläche von $200\ \text{nm} \times 200\ \text{nm}$ zu erhalten, gerade einmal $1 : 1200$. Um statistisch ein einzelnes NV-Zentrum im Resonator zu erzielen, müssten folglich 1200 Nanostrukturen hergestellt werden, eine per FIB-Strukturierung nicht zu realisierende Anzahl. Darüber hinaus kann mit diesem Ansatz auch keine für eine optimale Emitter-Resonator-Kopplung erforderliche, reproduzierbare Positionierung des NV-Zentrums im Feldmaximum einer Mode erfolgen. Aufgrund dieser Nachteile der Implantation per Zufall wurden in der vergangenen Dekade zahlreiche Techniken entwickelt, um das Stickstoffatom gezielt und reproduzierbar etwa in einem Resonator positionieren zu können.

Eine Möglichkeit hierzu ist, die Diamantoberfläche zunächst mit einem geschlossenen Fotolackfilm zu überziehen. Durch Elektronenstrahlolithografie wird der Fotolack im Anschluss derart mit kleinen Löchern strukturiert, dass durch die so erzeugten Aperturen die Stickstoffatome gezielt in den Diamanten eingebracht werden können [38, 270]. Hierbei muss die Dicke der aufgetragenen Fotolackschicht geeignet gewählt sein, um einerseits den Diamantfilm vor Ionenbeschuss zu schützen und andererseits im Lithografieprozess die Herstellbarkeit von Löchern mit möglichst kleinen Durchmessern zu gewährleisten. In einem $200\ \text{nm}$ dicken PMMA-Film konnten beispielsweise Aperturen in der Größenordnung von $80\ \text{nm}$ realisiert werden [270]. Die Stickstoffionen wurden bei einer Implantationsenergie von $20\ \text{keV}$ in eine Tiefe von etwa $30\ \text{nm}$ implantiert.

Als Alternative zu einer Maskierung durch eine lithografierte Fotolackschicht können auch in Schichtsilikaten (*Mica*) hergestellte Mikrokanäle als Apertur genutzt werden [40]. Zur Herstellung einer derartigen Hartmaske werden mehrere Mikrometer dicke Mica-Schichten auf die Probenoberfläche aufgebracht, wiederum mit einer Maske versehen und mit schweren Samariumionen bestrahlt. Der Ionenbeschuss erzeugt zylinderförmige Regionen von amorphem Material, das anschließend mit Flußsäure entfernt werden kann. Bei geeigneter Dauer des Säurebads konnten beispielsweise in einer $5\ \mu\text{m}$ dicken Mica-Schicht Aperturen bis hinunter zu $30\ \text{nm}$ erzielt werden [40]. Des Weiteren wurden Mikrokanäle selbst in $30\ \mu\text{m}$ dicken Mica-Schichten hergestellt. Die gezielte Implantation von Stickstoff konnte mit derartigen Masken selbst bei Energien von $2\ \text{MeV}$ mit resultierenden Implantationstiefen von bis zu $700\ \text{nm}$ erfolgreich durchgeführt werden. Eine weitere Möglichkeit stellt die Verwendung von strukturierten Hartmasken aus Silizium dar [42]. Durch Anlagerung von Aluminiumoxid konnten die Löcher in den Hartmasken sogar auf Durchmesser von $2,1\ \text{nm}$ als Apertur für die gezielte Implantation von Stickstoff verkleinert wer-

den. In diesem Zusammenhang ist jedoch anzumerken, dass alle bisher genannten Aperturgrößen lediglich Idealwerte für die laterale Auflösung der Implantation von Ionen in Resonatoren darstellen, die vor allem aufgrund der Ungenauigkeit in der relativen Positionierung der Masken zu den photonischen Nanostrukturen im realen Experiment nicht erreicht werden können. Beispielsweise kann die Apertur einer Mica-Maske 30 nm betragen, aufgrund der zufälligen Ausbildung der Mikrokanäle kann die Ausrichtung einer derartigen Öffnung relativ zu einer Zielposition auf der Probenoberfläche jedoch nur sehr ungenau erfolgen. Lediglich für Implantationsmasken aus Silizium wurde diese Hürde zufriedenstellend überwunden. Aktuelle Maskendesigns erlauben sowohl die Herstellung photonischer Strukturen in einem RIE-Prozess als auch die anschließende Stickstoffimplantation durch ein und dieselbe Maske [85, 86], mit erzielten Positioniergenauigkeiten der erzeugten NV-Zentren relativ zum Feldmaximum einer Resonatormode von bis zu 40 nm [85]. Diese Maskierungstechnik kann jedoch hier nicht angewendet werden, da die Stickstoffimplantation in bereits per FIB-Strukturierung hergestellte Nanostrukturen erfolgen soll.

Die Nanoimplantation durch die strukturierte Spitze eines Rasterkraftmikroskops (*atomic force microscope*, AFM) ermöglicht hingegen selbst für bereits hergestellte Nanostrukturen die Ausrichtung der Maske relativ zur Probe [39]. Bei dieser Technik wird der Ionenstrahl auf die Rückseite einer AFM-Spitze fokussiert, in der sich ein per FIB-Strukturierung hergestelltes Loch als Apertur befindet. Da die strukturierte AFM-Spitze in einem herkömmlichen Rasterkraftmikroskop eingebaut ist, kann die Probenoberfläche unmittelbar vor der Implantation abgerastert werden. Nach erfolgter Kartierung eines geeigneten, den Resonator umgebenden Bereichs kann die Zielposition auf der Diamantmembran, etwa der Ort des Feldmaximums einer Resonatormode, zuverlässig angefahren werden. Die erreichbare laterale Auflösung der Stickstoffimplantation, die sowohl die Positioniergenauigkeit der AFM-Spitze relativ zur Zielposition als auch die durch die Aperturgröße determinierte Ortsungenauigkeit der Implantation an sich berücksichtigt, liegt bei einer Implantationsenergie von 5 keV bei 20 nm [271], eine bis heute durch keine andere Implantationstechnik übertroffene Ortsauflösung für gezielt erzeugte NV-Zentren.

Die bisher diskutierten Techniken basieren allesamt auf einer Maskierung der Probe zur gezielten Implantation der Fremdatome. Mithilfe eines speziellen FIB-Geräts konnte die gezielte Stickstoffimplantation jedoch auch ohne Maskierung der Probenoberfläche demonstriert werden [41]. Die Probe kann in diesem Gerät durch eine zusätzlich eingebaute REM-Einheit kartiert und der Strahl aus Stickstoffionen anschließend auf die Zielposition ausgerichtet werden. Die räumliche Auflösung der Implantation von Stickstoff ist bei dieser maskenlosen Technik hauptsächlich durch den Durchmesser des Ionenstrahls von 100 nm bei einer typischen Beschleunigungsspannung von 30 kV limitiert. Die direkte FIB-Implantation kann folglich hinsichtlich der erreichbaren lateralen Auflösung mit der Technik der strukturierten AFM-Spitze nach aktuellem Stand noch nicht konkurrieren. Als maskenlose Alternative wurde bereits 2006 die Idee entwickelt, Stickstoffionen einzeln aus einer Ionenfalle zu entnehmen und auf die Probenoberfläche zu fokussieren [272]. Diese Technik verspricht bei Herunterkühlen der Ionen auf das Heisenberg-Limit (Grundzustand der Bewegung) sogar räumliche Auflösungen von bis zu 0,1 nm (ohne Berücksichtigung der zusätzlichen Streuung im Diamanten) [273, 274]. Aufgrund technischer Herausforderungen, so werden etwa die Stickstoffionen in einer Kette zusammen mit Calciumionen sympathetisch lasergekühlt

und müssen daher selektiv aus der Ionenfalle entnommen werden, konnte bis heute jedoch noch keine Implantation mit Stickstoff aus einer Ionenfalle heraus demonstriert werden. Die Realisierung dieser Idee würde zukünftig neben einer noch besseren Auflösung zusätzlich eine vollständige Kontrolle über die Anzahl der implantierten Stickstoffionen ermöglichen, während die zuvor diskutierten und heute bereits umgesetzten Techniken prinzipiell nur eine statistische Implantation einzelner Ionen erlauben.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Stickstoffionen durch Maskierung der Diamantoberfläche mit einer strukturierten AFM-Spitze gezielt in bereits hergestellte photonische Kristallresonatoren eingebracht. Die AFM-Implantationen wurden in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Jan Meijer durch Nicole Raatz an der Universität Leipzig durchgeführt. Im Folgenden wird zunächst die Implantationstechnik genauer vorgestellt sowie die konkrete Prozessierung für die implantierten Proben dargelegt. Im Anschluss daran werden die erforderlichen Nachbehandlungsschritte zur Aktivierung der NV-Zentren sowie die durchgeführten optischen Untersuchungen an den in die Resonatorflächen implantierten Farbzentren beschrieben.

8.1.1 Nanoimplantation durch eine AFM-Spitze

Der verwendete, speziell für hochauflösende Implantationen entwickelte AFM-Aufbau kombiniert eine kommerziell erhältliche Ionenkanone (*IQE 12/38*, SPECS GmbH) zur Erzeugung und Beschleunigung von Stickstoffionen mit einer AFM-Einheit zur Positionierung einer strukturierten AFM-Spitze über der zu implantierenden Stelle. Der Ionenstrahl wird in der Ionenquelle nach Durchlaufen der Beschleunigungsspannung zunächst fokussiert und im Anschluss mit einer Blende auf einen Durchmesser von $20\ \mu\text{m}$ eingegrenzt (Abbildung 8.1). Die Ionen werden anschließend mithilfe von elektrostatischen Linsen auf die Rückseite eines AFM-Auslegerarms projiziert. In der Nähe der pyramidenförmigen AFM-Spitze wurde per FIB-Strukturierung ein kleines Loch hergestellt, das als Apertur mit einem Durchmesser von hier $70\ \text{nm}$ die endgültige Form des Ionenstrahls festlegt. Der AFM-Auslegerarm schattet während des Implantationsvorgangs eine Nanostruktur, wie etwa einen Resonator in einer photonischen Kristallstruktur, bis auf den intendierten Implantationsbereich unterhalb der Öffnung in der AFM-Spitze vollständig ab.

Der durch die erste Blende festgelegte Durchmesser des Ionenstrahls von $20\ \mu\text{m}$ ist bewusst leicht größer gewählt als die Ausmaße des den Diamanten schützenden AFM-Auslegerarms. Dadurch werden Stickstoffionen nicht nur in den intendierten Probenausschnitt unterhalb des Lochs in der AFM-Spitze, sondern auch in Bereichen der Diamantoberfläche in unmittelbarer Umgebung des AFM-Auslegerarms implantiert. Dies ist einerseits unerwünscht, da zuvor bereits implantierte Bereiche unter Umständen ein zweites Mal implantiert werden oder Teile der Diamantoberfläche mit Stickstoffionen beschossen werden, die frei von Fremdatomen bleiben sollen. Andererseits erlaubt der kreisförmige Ionenbeschuss um den AFM-Auslegerarm herum die Ausrichtung des Ionenstrahls. Dazu wird neben der Probe ein mit PMMA überzogenes Siliziumstück eingebaut und eine Testimplantation von Stickstoff in PMMA durchgeführt. Der in PMMA bei hinreichender Implantationsdosis in einer Weißlichtabbildung mit einer CCD-Kamera erkennbare Implantationsspot erlaubt schließlich die Ausrichtung des Ionenstrahls zentral auf die AFM-Spitze. Diese

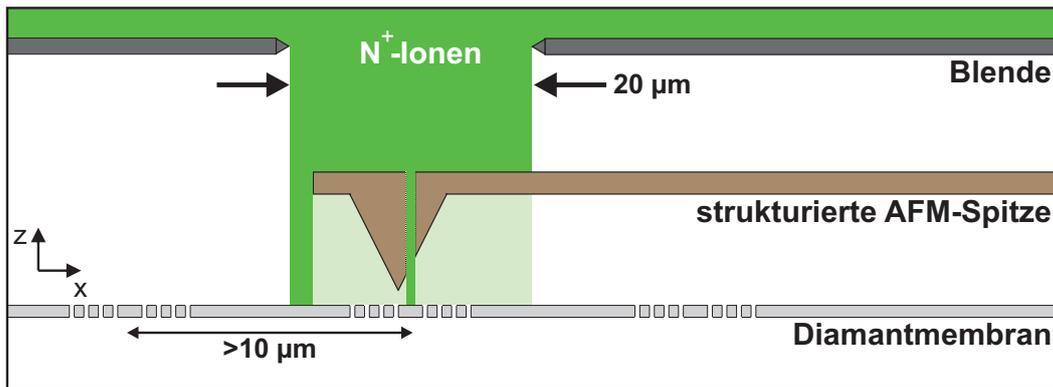


Abbildung 8.1: Schematische Darstellung der durchgeführten AFM-Implantationen. Der in der Ionenkanone erzeugte Strahl aus Stickstoffionen wird durch eine Blende auf einen Durchmesser von $20\ \mu\text{m}$ begrenzt und anschließend durch elektrostatische Linsen (nicht eingezeichnet) auf die Rückseite einer AFM-Spitze fokussiert. Durch ein in der AFM-Spitze per FIB-Strukturierung hergestelltes Loch mit einem Durchmesser von $70\ \text{nm}$ wird die endgültige Form des Ionenstrahls festgelegt. Die Stickstoffionen werden nach Ausrichtung der AFM-Spitze relativ zur Probe in die Resonatorfläche implantiert. Der AFM-Auslegerarm schirmt dabei die restliche Nanostruktur vollständig vor einem unerwünschten Ionenbeschuss ab.

Möglichkeit der gezielten und reproduzierbaren Ausrichtung stellt eine Grundvoraussetzung dar, um den Ionenfluss durch die Öffnung in der AFM-Spitze trotz eines inhomogenen Strahlprofils reproduzierbar einstellen zu können. Um eine ungewollte Sekundärimplantation aufgrund des großen Strahldurchmessers von etwa $20\ \mu\text{m}$ dennoch zu verhindern, muss jedoch bereits bei der Herstellung der photonischen Strukturen darauf geachtet werden, dass diese einen Abstand von mindestens $10\ \mu\text{m}$ zueinander aufweisen (siehe auch Abbildung 8.1).

Die räumliche Auflösung bei der gezielten Implantation von Stickstoffionen in Nanostrukturen wird jedoch nicht nur durch die Größe des Lochs in der AFM-Spitze von hier $70\ \text{nm}$, sondern auch durch die Genauigkeit der Positionierung der AFM-Spitze relativ zur Probe beeinflusst. Zur relativen Ausrichtung wird vor jeder Implantation eine herkömmliche AFM-Abrasterung durchgeführt, die einen hinreichend großen Bereich der Diamantoberfläche um die Zielposition herum abdeckt. Um die Nanostruktur, beispielsweise einen Resonator in einer photonischen Kristallstruktur, dabei nicht zu beschädigen, wird die Abrasterung kontaktlos durchgeführt (*non-contact mode*). In Abbildung 8.2 sind zwei exemplarische Aufnahmen einer derartigen Abrasterung dargestellt. Anhand einer solchen Kartierung kann die Probe im Anschluss derart positioniert werden, dass die Öffnung in der AFM-Spitze beispielsweise über dem Feldmaximum einer Resonatormode ausgerichtet ist. Da die in den AFM-Abrasterungen erzielbare Auflösung beim verwendeten Gerät $1\ \text{nm}$ beträgt [275] und der Probenhalter mithilfe von piezoelektrischen Positioniereinheiten in Schritten von $0,1\ \text{nm}$ verfahren werden kann, ergibt sich eine Genauigkeit der relativen Positionierung der Probe zur AFM-Spitze von etwas mehr als einem Nanometer.

Bei der Implantation von Fremdatomen wird die räumliche Auflösung darüber hinaus durch den physikalischen Effekt der Streuung (*straggling*) beeinflusst. Dringen die beschleunigten Stickstoff-

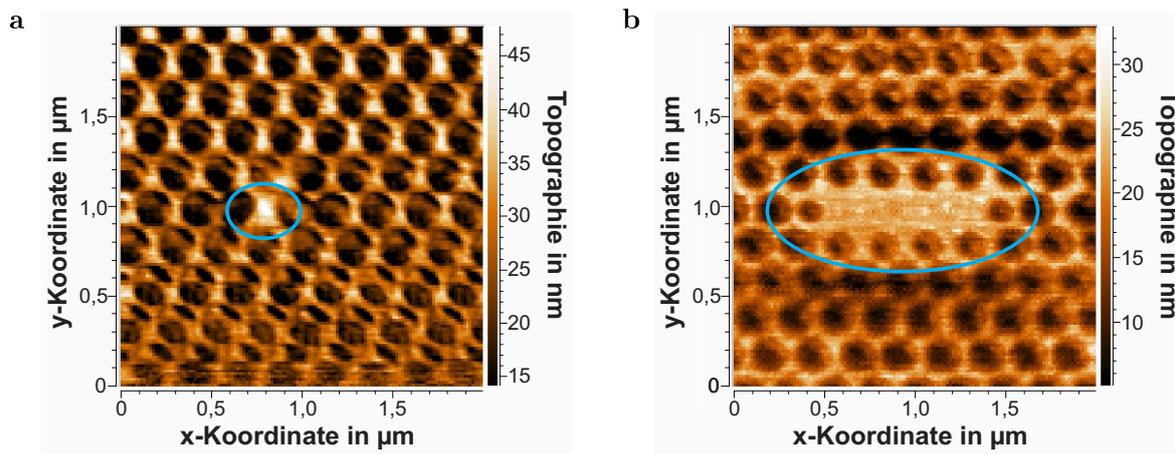


Abbildung 8.2: Topografische Abbildungen exemplarischer AFM-Abrasterungen (a) für einen M0-Resonator und (b) für einen M3-Resonator. In den Abbildungen sind sowohl die Lochmuster als auch die Resonatorfläche (blau markiert) zu erkennen.

fionen in den Diamanten ein, so weist deren Trajektorie aufgrund der Streuung der Ionen an Kohlenstoffatomen des Diamantgitters keine perfekte Gerade auf. Die resultierende Zielposition eines implantierten Fremdatoms ist folglich statistisch verteilt. Da die Ortsunbestimmtheit mit zunehmender Energie ansteigt, sollte zum Erreichen einer bestmöglichen Auflösung eine geringe Implantationsenergie gewählt werden. Bei der durch die verwendete Ionenquelle festgelegten Implantationsenergie von 5 keV wird der Einfluss der Streuung auf lediglich 3 nm begrenzt. Die Implantationsenergie beeinflusst jedoch neben der Stärke der auftretenden Streuung auch maßgeblich die erzielte Implantationstiefe. Um Stickstoffionen in die Mitte des Diamantfilms implantieren und somit für eine optimale Emitter-Resonator-Kopplung auch vertikal im Feldmaximum einer Resonatormode positionieren zu können, wären Energien um 85 keV erforderlich, die zum einen mit der verwendeten Ionenquelle nicht realisierbar sind und ferner die laterale Auflösung aufgrund der größeren Streuung auf etwa 20 nm verschlechtern würden. Bei allen heute verfügbaren hochauflösenden Techniken, die die gezielte Implantation von Stickstoffionen in bereits hergestellte Nanostrukturen ermöglichen, werden daher Fremdatome nur mit geringen Energien und somit automatisch oberflächennah eingebracht.

Da selbst oberflächennah implantierte Ionen vorhandene Kanäle im Diamantgitter nutzen können, um in größere Tiefen geleitet zu werden (*channeling*), ist die zu erwartende Implantationstiefe im Allgemeinen einer großen statistischen Schwankung unterworfen. Bei der gewählten Implantationsenergie von 5 keV werden die Stickstoffionen bei den hier verwendeten Diamantproben mit (001)-Oberfläche bis zu 26 nm tief implantiert, mit einer mittleren zu erwartenden Tiefe von 13 nm und einer Tiefe mit größter Wahrscheinlichkeitsdichte von 23 nm [276].

Implantation von Stickstoffionen in hergestellte Resonatoren

Mithilfe der beschriebenen AFM-Implantationseinheit wurden Stickstoffionen in M7, M3 und M0-Resonatoren implantiert, die in einer dünnen Diamantmembran in einem hybriden Proben-

system hergestellt wurden (siehe Kapitel 6). Die Nanostrukturen weisen Abstände von mindestens $25\ \mu\text{m}$ zueinander auf, unerwünschte Sekundärimplantationen werden somit vermieden. Durch Abpumpen der Vakuumkammer über eine Zeitspanne von 24 Stunden konnte ein Kammerdruck von $6,8 \cdot 10^{-6}$ mbar erzielt werden. Nach erfolgter Ausrichtung des Ionenstrahls zentral über der AFM-Spitze wurde durch eine AFM-Abrasterung der Probenoberfläche für jede Nanostruktur eine Karte erstellt (siehe Abbildung 8.2) und im Anschluss die Öffnung der AFM-Spitze über dem Feldmaximum der Fundamentalmode des jeweiligen Resonators positioniert. Für die Implantationen wurde die beste verfügbare AFM-Spitze verwendet, die eine Öffnung mit einem Durchmesser von $70\ \text{nm}$ aufweist. Die erzielte laterale Auflösung der Implantationen von Stickstoffionen in die Resonatoren liegt folglich bei einer Implantationsenergie von $5\ \text{keV}$ unter Berücksichtigung des Durchmessers des Lochs in der AFM-Spitze, dessen Positionierbarkeit relativ zur Probe sowie der diskutierten Streuung der implantierten Ionen bei insgesamt etwa $74\ \text{nm}$.

Bei der Bestimmung einer geeigneten Implantationsdosis muss beachtet werden, dass nicht jedes implantierte Stickstoffion ein Farbzentrum ausbildet. Die erzielte Erfolgsquote (*yield*) wird vornehmlich durch die Anzahl an verfügbaren Fehlstellen im Kristallgitter beeinflusst [189]. Fehlstellen werden während des Implantationsprozesses erzeugt, bei Erhitzen des Diamanten mobil und können bei hinreichend hohen Temperaturen zusammen mit einem vorhandenen Stickstoffatom ein NV-Zentrum bilden. Bei oberflächennah implantierten Ionen reduziert die nicht weit entfernte Diamantoberfläche jedoch den Anteil an verfügbaren Fehlstellen erheblich. Bei Erhitzen auf hohe Temperaturen rekombinieren beispielsweise $44\ \%$ der erzeugten Fehlstellen mit Kohlenstoffatomen des Diamantgitters und darüber hinaus gehen $49\ \%$ der Fehlstellen an der nahen Oberfläche unmittelbar durch Diffusion verloren [277]. Folglich steht oberflächennah nur noch ein geringer Anteil an Fehlstellen für die Bildung von Farbzentren zur Verfügung. Für einen breiten Dosenbereich ermittelten Pezzagna et al. [189] für die Bildung von NV-Zentren bei der Implantation von Stickstoff mit einer Energie von $5\ \text{keV}$ durch eine strukturierte AFM-Spitze eine Erfolgsquote von $0,8\ \%$. Im Rahmen dieser Arbeit in hochreinen Diamantfilmen (*electronic grade* Qualität) durchgeführte Testimplantationen lieferten in guter Übereinstimmung dazu Werte zwischen $0,6\ \%$ bis hin zu $1,0\ \%$.

Um statistisch ein einzelnes NV-Zentrum pro implantiertem Resonator zu erhalten, muss bei der vorliegenden Aperturgröße unter Berücksichtigung der Erfolgsquote der Bildung eines NV-Zentrums eine errechnete Optimaldosis von $2,7 \cdot 10^{12}$ Ionen/ cm^2 gewählt werden. Da die Erzeugung von Farbzentren ein statistischer Prozess ist, wurde die Implantationsdosis für die einzelnen Resonatoren zwischen einer halben bis hin zur dreifachen Optimaldosis variiert.

8.1.2 Aktivierung und Nachweis implantierter NV-Zentren

Im Folgenden werden zunächst die Nachbehandlungsschritte beschrieben, die erforderlich sind, um im Anschluss an die Implantation von Stickstoffionen die Bildung von NV-Zentren zu ermöglichen, eine gute Kristallqualität wiederherzustellen und darüber hinaus eine effektive Konvertierung der erzeugten Farbzentren in den negativen Ladungszustand zu ermöglichen. Im Anschluss daran werden die optischen Messungen dargelegt und diskutiert, die im Rahmen dieser Arbeit

durchgeführt wurden, um die erfolgreiche Erzeugung von NV-Zentren zu belegen sowie die Farbzentren in den Resonatoren näher zu untersuchen.

Nachbehandlung

Nach erfolgter Implantation von Stickstoffionen wurden die Proben im Vakuum für 10 h einer Temperatur von 900 °C ausgesetzt. Dies hat mehrere Gründe: Eine Folge des Ioneneinschlags sind Kaskaden von im Diamantgitter verschobenen Kohlenstoffatomen verbunden mit der Auflösung von sp^3 -Hybridisierungen (siehe Kapitel 6). Diese Schäden im Diamantgitter wirken sich nachteilig auf die Photolumineszenzeigenschaften der Farbzentren aus, Emitter zeigen beispielsweise eine reduzierte Photostabilität sowie eine verminderte Emissionsrate. Ferner können derartige Fehlstellen für eine erhöhte Hintergrundfluoreszenz im roten Spektralbereich sorgen. Liegt die Konzentration an erzeugten Defekten noch unterhalb einer Schwelle von etwa 10^{22} Fehlstellen pro Kubikzentimeter Diamant, so ermöglicht das Erhitzen auf derartige Temperaturen die vollständige Wiederherstellung einer guten Kristallqualität [252]. Des Weiteren werden Fehlstellen bereits ab einer Temperatur von 700 °C beweglich und können durch das Kristallgitter hindurch diffundieren. Ein Großteil der Fehlstellen geht zwar wie angesprochen an der Diamantoberfläche verloren oder rekombiniert mit verschobenen Kohlenstoffatomen im Diamantgitter [277], ein kleiner Anteil der erzeugten Fehlstellen erreicht jedoch auch ein zuvor implantiertes Stickstoffatom. In Folge dessen kann ein Stickstoff-Fehlstellenzentrum erzeugt werden.

Bei Erhitzen auf derart hohe Temperaturen werden jedoch auch stets ein paar Nanometer der Diamantoberfläche zu sp^2 -hybridisiertem Kohlenstoff wie etwa Graphit umgewandelt, etwa aufgrund eines nicht perfekten Vakuums im Ofen oder auch aufgrund von Implantationsschäden oberhalb einer Schwelle von 10^{22} Fehlstellen pro Kubikzentimeter Diamant. Die sp^2 -hybridisierten Schichten wurden vor der optischen Untersuchung bei Temperaturen von 450 °C in Luftatmosphäre oxidiert sowie zusätzlich in dem bereits eingeführten Drei-Säuren-Mix aus Schwefelsäure, Salpetersäure und Perchlorsäure chemisch entfernt.

Die Behandlung der Probenoberfläche durch Erhitzen auf derartige Temperaturen in Luftatmosphäre sowie Reinigen in den beschriebenen Säurebädern ermöglicht ferner die Konvertierung entstandener NV-Zentren in die erwünschte negative Ladungskonfiguration. Um einen negativen Ladungszustand erzielen zu können, muss in der Nähe des Farbzentrums zunächst ein Elektron zur Verfügung gestellt werden. Die Aufgabe eines solchen Elektronendonators übernehmen in der Regel benachbarte, ebenfalls implantierte Stickstoffatome [278, 279]. Nachteiligerweise wirken sowohl eine Graphitisierung als auch eine in der Regel vorliegende Wasserstoffterminierung der Diamantoberfläche bis in eine Tiefe von etwa hundert Nanometer als weitere Elektronenakzeptoren, die von den Stickstoffatomen zur Verfügung gestellte Elektronen in Konkurrenz zu den erzeugten NV-Zentren ebenfalls binden können [280, 281]. Durch die dargelegten Nachbehandlungsschritte kann jedoch eine unter Umständen vorhandene Graphitschicht zuverlässig entfernt werden, ferner resultiert aus dem Oxidieren an Luft sowie den Säurebädern eine Sauerstoffterminierung der Oberfläche. Die Wahrscheinlichkeit, ein NV-Zentrum im negativen Ladungszustand vorliegen zu haben, kann somit durch die erfolgte Nachbehandlung deutlich erhöht werden.

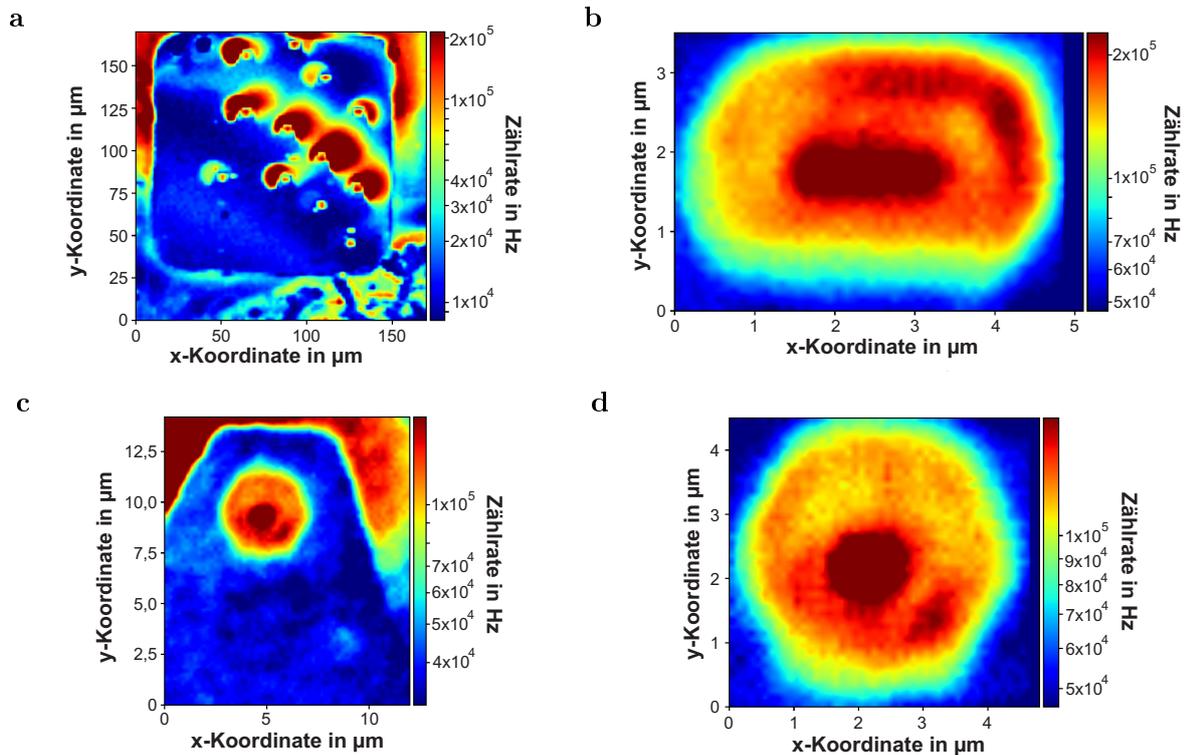


Abbildung 8.3: Ortsaufgelöste Intensitätsabbildungen implantierter Nanostrukturen. (a) Fluoreszenzbild einer wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran mit zwölf durch die AFM-Spitze implantierten Resonatoren (Auflösung: 1000 nm) sowie Fluoreszenzbilder bei feinerer Abrasterung (b) eines M3-Resonators und (c) eines M0-Resonators (Auflösung: 100 nm). (d) Fluoreszenzbild des gleichen M0-Resonators bei der kleinst möglichen Schrittweite (Auflösung: 50 nm). Die farblich kodierte Zählrate ist logarithmisch aufgetragen. Die Anregung erfolgte mit einem grünen Laser bei 532 nm bei einer Laserleistung von 500 μ W.

Implantationsergebnisse

In Abbildung 8.3 sind ortsaufgelöste Intensitätsabbildungen einer implantierten, wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran dargestellt. In dem Übersichtsbild in Abbildung 8.3a sind die einzelnen Implantationsspot um die zwölf Resonatoren herum jeweils gut zu erkennen, die unterschiedlich hohen Intensitäten sind dabei auf die intendierte Variation der Implantationsdosis zurückzuführen. Auch die Positionen der implantierten Resonatoren sind trotz der groben Auflösung bereits zu erahnen. Wird die Umgebung eines Resonators mit einer kleineren Schrittweite abgerastert, so ist darüber hinaus zu erkennen, dass die Resonatorflächen ebenfalls eine erhöhte Intensität aufweisen (Abbildung 8.3b-d). Diese Beobachtungen lassen auf eine erfolgreiche Bildung von NV-Zentren in den Bereichen erhöhter Intensität nach der Implantation von Stickstoffionen und erfolgter Nachbehandlung der Probe schließen, insbesondere sollten somit in den Resonatorflächen Farbzentren erfolgreich erzeugt worden sein. Anhand der Intensitätsabbildungen bei hinreichend kleiner Schrittweite lässt sich ferner der jeweilige Resonatortyp zuverlässig erkennen, die Abbildungen erlauben jedoch nicht, die genaue Position der Farbzen-

tren in der jeweiligen Resonatorfläche zu bestimmen. Die im Vergleich zu den Implantationsspots sowie den Resonatorflächen niedrige Fluoreszenzintensität in unmittelbarer Umgebung der Resonatoren lässt darüber hinaus auf eine erfolgreiche Abschirmung des Ionenstrahls durch den AFM-Auslegerarm während des Implantationsvorgangs schließen (Abbildung 8.3c).

Des Weiteren ist bei den abgebildeten orts aufgelösten Intensitätsabbildungen auffällig, dass die detektierte Photonenrate im Bereich der photonischen Kristallstrukturen auch außerhalb der Resonatorflächen gegenüber der Photonenrate der umliegenden Diamantmembran deutlich erhöht ist. Diese erhöhte Zählrate ist auf die in der Diamantmembran vorhandene Untergrundemission zurückzuführen und nicht etwa auf großflächige, ungewollte Stickstoffimplantationen. Sowohl spektroskopische Untersuchungen bei tiefen Temperaturen als auch ODMR-Messungen konnten keinen Hinweis auf in den photonischen Kristallstrukturen außerhalb der Resonatorflächen eventuell vorhandene NV-Zentren liefern. Insbesondere bei der gewählten Anregung mit einem grünen Laser bei 532 nm weist der verwendete Diamant jedoch eine ausgeprägte Untergrundemission auf, die sich über einen breiten Spektralbereich erstreckt. Während die abgestrahlte Untergrundemission in den unstrukturierten Bereichen der Diamantmembran im Mittel zu über 97% innerhalb der Membran geführt wird (siehe Kapitel 7), erlauben die Löcher der photonischen Kristallstruktur hingegen die erhöhte Auskopplung von Licht in die beiden Halbräume. Folglich kann durch ein vertikal über der Diamantoberfläche positioniertes Objektiv im Bereich der Nanostruktur bei gleicher Emissionsrate des Untergrunds eine erhöhte Photonenrate detektiert werden, Simulationen sagen eine Erhöhung der Sammeffizienz um etwa eine Größenordnung voraus. Darüber hinaus ist davon auszugehen, dass aufgrund der FIB-Strukturierung die Untergrundemission im prozessierten Bereich der Diamantmembran trotz der umfangreichen Nachbehandlungsmaßnahmen zusätzlich leicht erhöht ist.

Neben den orts aufgelösten Intensitätsabbildungen wurden in den implantierten Resonatorflächen Photolumineszenzspektren bei Temperaturen von 10 K aufgenommen (Abbildung 8.4). In allen Spektren ist neben den Resonatormoden eine neue Spektrallinie bei etwa 638 nm zu erkennen, die im Gegensatz zu den Moden sowohl Polarisationsanteile in Richtung der Resonatorachse als auch senkrecht dazu aufweist. Darüber hinaus wurden ODMR-Spektren aufgenommen, die jeweils einen eindeutigen Einbruch der Fluoreszenz bei kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung mit Frequenzen um 2,87 GHz zeigen. Aufgrund dieser Messergebnisse kann geschlussfolgert werden, dass in allen Resonatoren nach der Implantation von Stickstoffionen und den anschließenden Nachbehandlungsschritten erfolgreich NV-Zentren erzeugt werden konnten. Da jedoch selbst in den Tieftemperaturspektren von mit halber Optimaldosis implantierten Resonatoren eine Nullphonenlinie zu erkennen ist, kann davon ausgegangen werden, dass zumindest in den mit höheren Dosen implantierten Nanostrukturen mehrere NV-Zentren vorliegen.

Die durchgeführten Nachbehandlungsschritte bei dieser Probe sowie der Diamantprobe, in der die Testimplantationen erfolgten, waren identisch. Eine mögliche Ursache für die hier erzielte höhere Bildungsquote der NV-Zentren können abweichende Materialeigenschaften der beiden Proben sein, auch wenn es sich in beiden Fällen um die gleiche Diamantqualität (*electronic grade* Qualität) gehandelt hat. Ferner kann die Tatsache, dass die Testimplantationen in unbearbeitetem Volldiamantmaterial und die endgültigen Implantationen in RIE-prozessierte und mit photoni-

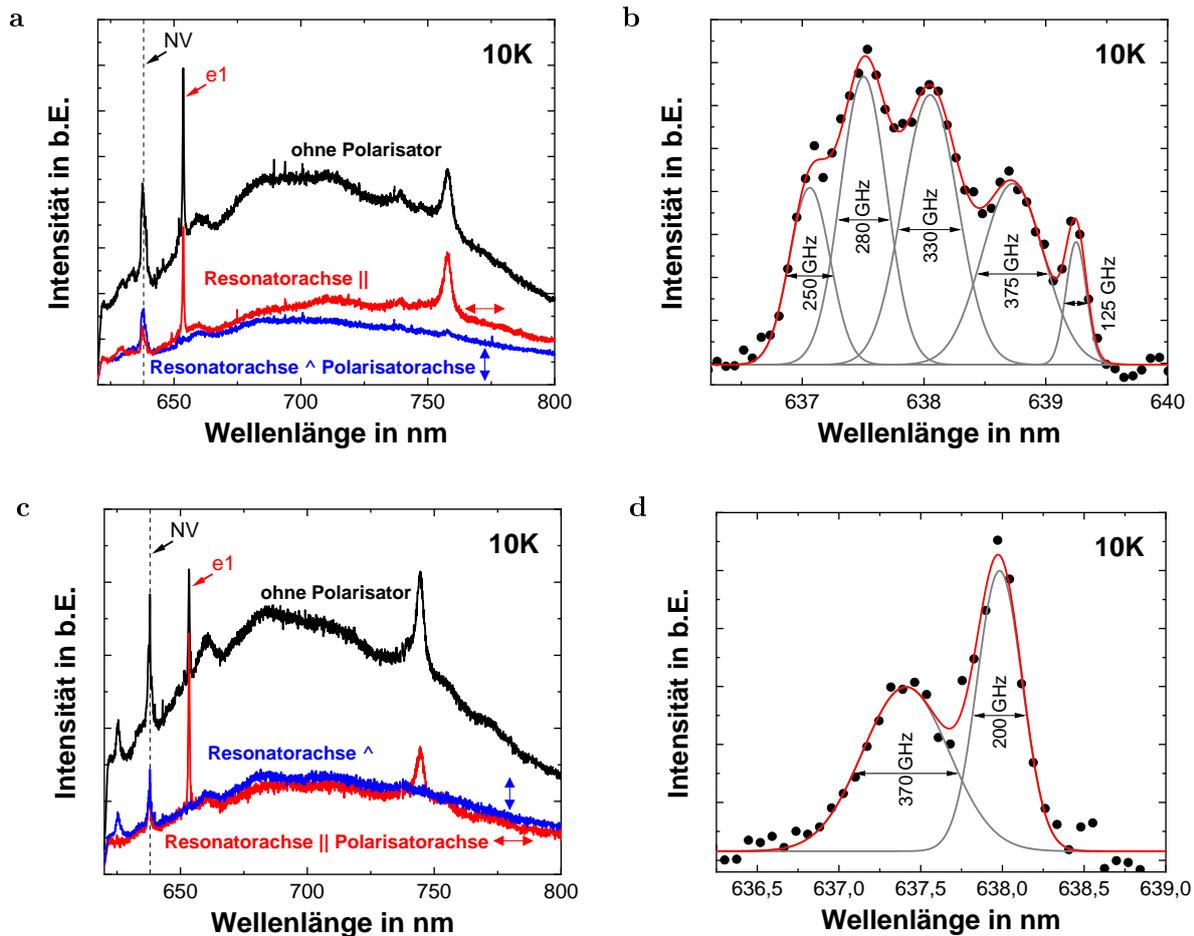


Abbildung 8.4: Photolumineszenzspektren eines M0-Resonators implantiert mit dreifacher Optimaldosis (a und b) und eines M0-Resonators implantiert mit halber Optimaldosis (c und d) bei einer Temperatur von 10 K. (a und c) Die rote und die blaue Kurve stellen zusätzlich aufgenommene Spektren mit einem Polarisationsfilter im Strahlengang dar. Bei Polarisatorstellung in Richtung der Resonatorachse (rot) werden o -Moden unterdrückt, bei Ausrichtung senkrecht dazu (blau) e -Moden. Die geraden $e1$ -Moden weisen Gütefaktoren von $Q = 1440 \pm 25$ (a) bzw. $Q = 2060 \pm 50$ (c) auf. Zusätzlich zur jeweiligen Fundamentalmode ist eine Spektrallinie im Bereich von 638 nm zu erkennen, die den Nullphononenlinien der NV-Zentren zugeschrieben werden kann. Die beiden Spektren wurden mit einem 600er-Gitter mit einer Integrationszeit von 60 s aufgenommen. (b und d) Zugehörige Spektren mit einem 1800er-Gitter. Bei Wellenlängen um 638 nm lassen sich hier mehrere Linien erkennen, die mit Gaußkurven (grau) angepasst werden können. Das jeweilige Spektrum lässt sich in diesem Wellenlängenbereich durch die Summe dieser Gaußkurven (rot) passend modellieren. Diese beiden Spektren wurden mit einer Integrationszeit von 120 s aufgenommen. Die Anregung erfolgte mit einem grünen Laser bei 532 nm bei einer Laserleistung von 500 μ W.

schon Kristallresonatoren strukturierte Diamantfilme erfolgten eine Ursache sein. Des Weiteren sind technisch bedingte Unsicherheiten bei dem eingestellten Ionenstrom während der AFM-Implantationen nicht auszuschließen.

Der M0-Resonator in den exemplarischen Tieftemperaturspektren in den Abbildungen 8.4a und 8.4b wurde mit dreifacher Optimaldosis implantiert. Bei spektroskopischer Untersuchung bei Wellenlängen um 638 nm sind mehrere Linien zu erkennen, die durch fünf Gaußkurven mit Halbwertsbreiten von 125 GHz bis hin zu 375 GHz angepasst werden können. In dieser Resonatorfläche sind folglich mindestens fünf NV-Zentren erzeugt worden, es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass die einzelnen Nullphononenlinien auf die Emission von jeweils mehr als einem NV-Zentrum zurückzuführen sind. Eine gaußförmig verbreitete NV-ZPL ist aufgrund einer üblicherweise in den verwendeten Diamantproben vorliegenden spektralen Diffusion unter kontinuierlicher Laseranregung (siehe Kapitel 2) zu erwarten.

Der M0-Resonator in den Abbildungen 8.4c und 8.4d wurde mit halber Optimaldosis implantiert. Im Spektrum um 638 nm sind lediglich zwei Linien zu erkennen, die ebenfalls durch Gaußkurven hier mit Halbwertsbreiten von 370 GHz bzw. 200 GHz angepasst werden können. NV-Zentren können, wie in Kapitel 2 bereits erläutert wurde, bei tiefen Temperaturen aufgrund vorliegender Transversalverspannungen, die eine energetische Aufspaltung der beiden Orbitalzweige des angeregten Zustand bewirken, eine Doppellinie aufweisen. Allerdings wäre für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten hochreinen Diamantfilme aufgrund vorliegender Transversalverspannungen lediglich eine Aufspaltung der Nullphononenlinie von maximal wenigen zehn Gigahertz erklärbar [165], nicht aber der im Spektrum gemessene Abstand der beiden Spektrallinien von 435 GHz. Darüber hinaus wurde die Emission aus der Resonatorfläche auch mittels der Autokorrelationsfunktion $g^2(\tau)$ auf Einzelphotonencharakter hin untersucht. Die Funktion $g^2(\tau)$ liefert die Wahrscheinlichkeit, in einem Zeitintervall der Länge τ gleichzeitig mehr als ein Photon zu detektieren (siehe auch Kapitel 5). Die Autokorrelationsfunktion zeigt bei diesem M0-Resonator wie auch bei weiteren untersuchten Resonatoren keinen Einbruch der Anzahl detektierter Photonen für $\tau = 0$. Um zumindest eine Untergrenze für die Anzahl der inkorporierten NV-Zentren bestimmen zu können, wird im Folgenden der zu erwartende Funktionswert $g^2(\tau)$ in Abhängigkeit der Anzahl der NV-Zentren im Resonator und unter Berücksichtigung des durch eine Sättigungsmessung bestimmten Anteils der Untergrundemission an der Gesamtemission von $p_U = 31\%$ abgeschätzt. Für den zu erwartenden Funktionswert bei n NV-Zentren gleicher Emissionsstärke im Resonator gilt [123]: $g^2(0) = 1 + ((1 - 1/n) - 1) \cdot (1 - p_U)^2$. Somit wäre für einen einzelnen Emittter mit einem Einbruch auf $g^2(0) = 0,53$ zu rechnen, für drei Emittter beispielsweise auf $g^2(0) = 0,84$ und für zehn Emittter auf $g^2(0) = 0,95$. Da in unserer Autokorrelationsfunktion kein Einbruch zu beobachten ist, ist davon auszugehen, dass mehr als zehn Emittter in der Resonatorfläche erzeugt wurden.

Zusammengefasst konnten durch die beschriebene Methodik in allen implantierten Resonatorflächen NV-Zentren erzeugt und nachgewiesen werden. Aufgrund der durchgeführten Messungen ist jedoch davon auszugehen, dass in keinem der Resonatoren ein einzelnes NV-Zentrum vorliegt, sondern stets mehrere Farbzentren vorhanden sind.

8.2 Deterministische Abstimmung einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren

Da die Moden photonischer Kristallresonatoren ein insbesondere hinsichtlich ihrer Resonanzwellenlänge sensitives Verhalten gegenüber kleinsten Fabrikationsabweichungen zeigen und darüber hinaus eine zielgenaue Herstellung photonischer Nanostrukturen in der für eine deterministische Emitter-Resonator-Kopplung erforderlichen Präzision in Diamant herausfordernd bis unmöglich ist, wurden in den vergangenen Jahren zahlreiche Methoden entwickelt, um die spektralen Positionen von Resonatormoden nach Herstellung der Nanostrukturen gezielt etwa auf die Nullphononenlinie von Farbzentren abstimmen zu können. Eine mittlerweile etablierte Möglichkeit ist die Oxidation von Diamant an Luft oder auch in einer Sauerstoffatmosphäre [82, 88]. Bei Erhitzen auf Temperaturen über 450°C beginnt Diamant an der Oberfläche zu oxidieren, die Dicke der Diamantmembran nimmt folglich ab bei gleichzeitiger Vergrößerung der Radien der Luftzylinder. Wie bereits in Kapitel 6 dargelegt wurde, führen bei allen im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Resonatortypen sowohl größere Lochradien als auch eine dünnere Diamantschicht zu einer Blauverschiebung der Resonanzwellenlänge der Moden (siehe Abbildung 6.1a und 6.6a). Die spektralen Positionen der Resonatormoden verschieben sich dabei selbst bei kleinsten geometrischen Änderungen stark, Simulationen sagen beispielsweise für ein Entfernen von lediglich 5 nm oberflächennahem Diamant eine Verschiebung der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode des M0-Resonators um 12 nm hin zu kürzeren Wellenlängen voraus. Die Oxidationstechnik wurde bereits erfolgreich eingesetzt, um etwa Moden von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen selbst über spektrale Distanzen von bis zu 20 nm auf die Nullphononenlinie von SiV-Zentren abzustimmen [88, 237]. Da diese Abstimmungsmethode jedoch keine kontinuierliche Überwachung der spektralen Positionen der Resonatormoden während des Abstimmungsprozesses im Ofen erlaubt, musste die Prozessierung folglich über sehr viele kleine Schritte jeweils unterbrochen durch erneute spektroskopische Untersuchungen erfolgen.

Werden die Luftzylinder hingegen verkleinert oder die Dicke der Diamantmembran vergrößert, so sagen Simulationen eine Verschiebung der Resonanzwellenlänge der Moden hin zu längeren Wellenlängen voraus. Eine mehrere Mikrometer dicke Diamantschicht konnte zwar in einem CVD-Prozess selbst nach bereits erfolgter AFM-Implantation und Erzeugung von NV-Zentren homoepitaktisch auf einen Diamantfilm aufgewachsen werden [282], die Abstimmung einer Resonatormode auf einen Emitter durch das deterministische Aufwachsen einer lediglich wenige Nanometer dicken Diamantschicht konnte jedoch bis heute noch nicht demonstriert werden. Eine alternative Möglichkeit ist, ein inertes Gas wie etwa Xenon oder Stickstoff bei Flüssigheliumtemperaturen auf die Probenoberfläche zu leiten [82, 234, 283]. Gasmoleküle kondensieren an der Oberfläche sowie in den Löchern der photonischen Kristallstrukturen, die Lochradien werden somit verkleinert und die Schichtdicke vergrößert. Für einen M3-Resonator in Galliumarsenid konnte durch Kondensation sowohl von Xenongas als auch von Stickstoffgas eine Verschiebung der Resonanzwellenlänge einer Mode um bis zu 4 nm erzielt werden [283]. In einer eindimensionalen photonischen Kristallstruktur in Diamant konnte eine Resonatormode durch Anlagerung von Xenon sogar um 7 nm hin zu größeren Wellenlängen spektral verschoben und somit erfolgreich

in Resonanz mit der Nullphononenlinie eines einzelnen NV-Zentrums gebracht werden [82]. Des Weiteren erlaubte das anschließende Erwärmen der Proben auf Temperaturen über 160 K für Xenon bzw. 63 K für Stickstoff stets die rückstandsfreie Entfernung der auf der Probenoberfläche kondensierten Schichten. Eine Abstimmung der spektralen Modenposition durch Gasanlagerung ist folglich reversibel, im Gegensatz zur beschriebenen Oxidationstechnik.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Abstimmungstechniken eingesetzt, die sich gegenseitig ergänzen und in Kombination die deterministische Abstimmung einer Mode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren ermöglichen. Die Anwendung der beschriebenen Oxidationstechnik erlaubt zunächst eine grobe, aber dennoch zuverlässige spektrale Verschiebung der Resonatormoden hin zu kürzeren Wellenlängen, ohne eine Verminderung der Gütefaktoren hinnehmen zu müssen. Eine spezielle Gasablagerungstechnik, bei der das im Probenraum des Kryostaten vorhandene Restgas an den Nanostrukturen angelagert wird, ermöglicht anschließend die Mode unter ständiger optischer Kontrolle gezielt hin zu längeren Wellenlängen zu verschieben. In diesem Abschnitt wird der durchgeführte Abstimmungsprozess dargelegt und dabei insbesondere auf die eingesetzte Gasablagerungstechnik eingegangen. Ferner werden die nach erfolgter Abstimmung durchgeführten optischen Analysen beschrieben und die zentralen Ergebnisse dargelegt. In diesem Rahmen wird insbesondere auch auf die Bestimmung des erzielten generalisierten Purcell-Faktors eingegangen. Im letzten Teil des Abschnitts erlaubt das in Kapitel 3 eingeführte Ratenvergleichsmodell darüber hinaus die Ermittlung des theoretisch zu erwartenden generalisierten Purcell-Faktors sowie die Untersuchung möglicher Limitierungen.

8.2.1 Abstimmung durch Oxidation und Gasanlagerung

Um eine zuverlässige Aussage über die erforderlichen Prozessparameter sowie die resultierenden spektralen Verschiebungen der Moden treffen zu können, wurden die eingesetzten Abstimmungstechniken zunächst an verschiedenen Resonatoren in verschiedenen Proben getestet. Für die Oxidationstechnik zeigte sich dabei, dass bei den verwendeten hochreinen Diamantfilmen Temperaturen von mindestens 515 °C erforderlich sind, um eine Verschiebung der spektralen Modenpositionen nachweisen zu können. Wurde eine Probe beispielsweise für 30 min auf 515 °C erhitzt, so konnte eine Verschiebung der Resonanzwellenlängen der Moden um etwa 0,1 nm hin zu kürzeren Wellenlängen beobachtet werden. Bei Wahl einer leicht erhöhten Temperatur von 525 °C lag eine Blauverschiebung der Moden um etwa 1,2 nm pro durchgeführtem halbstündigen Oxidationsschritt vor. Bei Raten in dieser Größenordnung kann eine hinreichende Kontrolle des Abstimmungsprozesses durch zwischengeschaltete spektroskopische Untersuchungen gewährleistet werden und dennoch eine effektive Verschiebung der Moden erfolgen.

Bei beiden verwendeten Kryostaten trat zumindest bei Raumtemperatur regelmäßig der Effekt auf, dass Resonatormoden bei spektroskopischen Untersuchungen nach Abpumpen auf Drücke um 10^{-4} mbar andere Resonanzwellenlängen aufwiesen als bei zuvor erfolgten Messungen bei normalem Umgebungsdruck. Dieser Effekt kann jedoch entgegen ersten Annahmen nicht durch die vorliegende Druckänderung sowie eine damit verbundene Änderung der Geometrie der photonischen Kristallstrukturen erklärt werden, da gezeigt werden konnte, dass die Moden unter

kontinuierlicher Laseranregung bei 532 nm ihre spektralen Positionen weiter zu längeren Wellenlängen hin änderten, selbst wenn der Druck in der Probenkammer konstant gehalten wurde. Darüber hinaus wurden in allen Messreihen nur die Wellenlängen der Moden des direkt bestrahlten Resonators beeinflusst und zwar umso stärker, je größer die Laserleistung war. Die Moden anderer Nanostrukturen, die sich nicht im Laserfokus befanden, behielten ihre spektralen Positionen hingegen unabhängig vom Druck in der Probenkammer stets bei.

All diese Beobachtungen können wie folgt gedeutet werden: Da die Vakuumpumpe bei dem verwendeten Kryostaten am höchsten Punkt der Probenkammer angeschlossen ist, werden durch Abpumpen auf moderate Drücke um 10^{-4} mbar leichte Moleküle wie etwa Stickstoff oder Helium fast vollständig entfernt, wohingegen schwere Gasmolekülararten wie etwa diverse Kohlenwasserstoffe zu einem höheren Anteil im Probenraum verbleiben. Aufgrund der beschriebenen Beobachtungen ist davon auszugehen, dass diese Restgasmoleküle unterstützt durch den Laserstrahl in Richtung Probe transportiert werden und sich auf der durch die Laserbestrahlung veränderten Diamantoberfläche und vermutlich auch in den bestrahlten Löchern der photonischen Kristallstrukturen ablagern. Eine derartige Absorption der Restgasmoleküle in der Anwesenheit von Licht wird auch als Photoadsorption bezeichnet. Bei einer größeren Laserleistung liegt wie zu erwarten auch eine größere spektrale Verschiebungsrate vor, da mehr Gasmoleküle pro Zeit angelagert werden.

Nach weiterem Abpumpen und anschließendem Abkühlen auf Flüssigheliumtemperaturen war hingegen keine weitere Verschiebung der Moden mehr zu beobachten. Eine Mode, die bei Raumtemperatur eine gewisse Resonanzwellenlänge aufwies, behielt diese spektrale Position auch stets bei tiefen Temperaturen bei und auch insbesondere dann, wenn der Resonator bei tiefen Temperaturen erneut mit einem grünen Laser bestrahlt wurde. Diese Beobachtung kann dadurch erklärt werden, dass beim Abkühlen auf Flüssigheliumtemperaturen die im Probenraum verbliebenen Gasmoleküle nahezu vollständig an den umgebenden Metallteilen kondensieren.

Die Anlagerung von Restgasmolekülen wurde auch von anderen Forschergruppen für die beobachtete Verschiebung der Resonanzwellenlängen der Moden in einem Kryostaten verantwortlich gemacht. So wurde beispielsweise von photonischen Kristallstrukturen in Galliumarsenid berichtet, an denen sich Restgas sogar ohne zusätzliche Laserbestrahlung anlagerte und somit zu einer Verschiebung der spektralen Positionen der Moden um mehrere Nanometer führte [283].

In Abbildung 8.5 sind die Photolumineszenzspektren eines M3-Resonators in Abhängigkeit der Dauer der Lasereinstrahlung aufgetragen. Sowohl die geraden als auch die ungeraden Moden weisen bei der durchgeführten zweistündigen Messung eine kontinuierliche Rotverschiebung ihrer Resonanzwellenlängen auf. Die drei ungeraden Moden ändern unter ständiger Laseranregung ihre Wellenlängen mit einer übereinstimmenden und darüber hinaus konstanten Rate von 3,4 nm/h. Während die *e3*-Mode eine ebenfalls konstante Rate aufweist, zeigen die *e1*-Mode sowie die *e2*-Mode des M3-Resonators ein hiervon abweichendes Verhalten. Die *e2*-Mode ändert ihre Resonanzwellenlänge zunächst mit einer größeren Rate als die *e1*-Mode, bis die beiden Moden schließlich bei einer Wellenlänge von etwa 637 nm nahezu die gleiche spektrale Position aufweisen. Da jedoch eine Kreuzung zweier gerader Eigenzustände grundsätzlich nicht möglich ist (siehe Kapitel 4), können die betrachteten Moden ihre Anordnung im Spektrum nicht vertauschen, es liegt eine

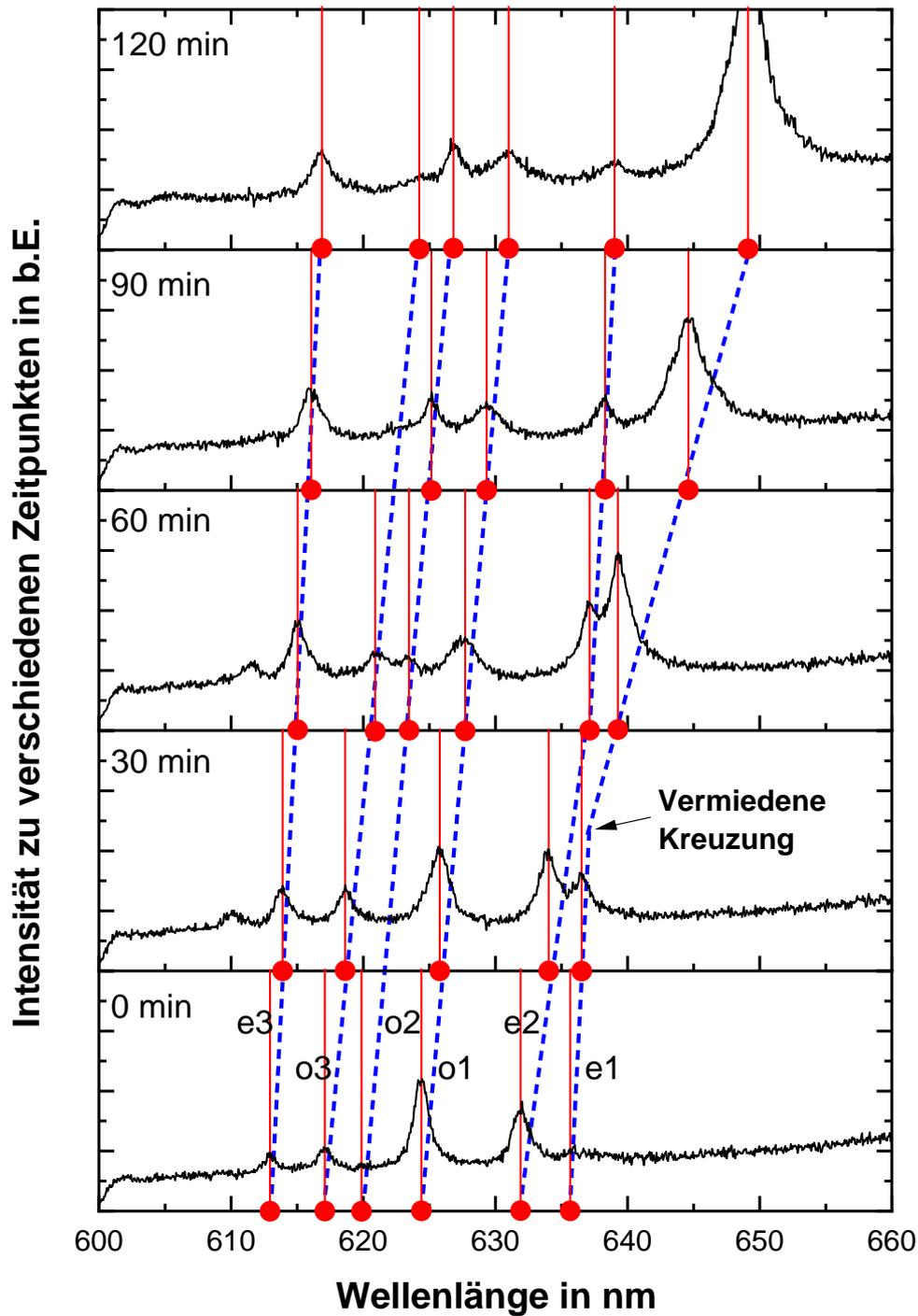


Abbildung 8.5: Photolumineszenzspektren eines M3-Resonators zu verschiedenen Zeitpunkten unter kontinuierlicher Anregung durch einen grünen Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm. Die Laserleistung betrug 1,5 mW. Der Kryostat wurde bei Raumtemperatur und einem Druck von 10^{-4} mbar betrieben. Die Variationen in der Intensität sind auf eine leichte Drift des Laserfokus aufgrund von instabilen Positionierern im verwendeten Kryostaten zurückzuführen.

sogenannte vermiedene Kreuzung vor. Bei weiterer Lasereinstrahlung entfernen sich die Moden spektral wieder, die $e1$ -Mode zeigt dabei eine im Vergleich zu Beginn des Abstimmungsprozesses vergrößerte Rate von hier 6 nm/h, wohingegen die $e2$ -Mode eine verminderte Rate von lediglich 1 nm/h aufweist. Die bei einer geeigneten Laserleistung erzielten moderaten Verschiebungsraten im Bereich von wenigen Nanometern pro Stunde erlauben parallel die kontinuierliche Kontrolle des Fortschritts in Form von in regelmäßigen Zeitabständen aufgenommenen Spektren. Für M0 und M7-Resonatoren konnten Verschiebungsraten in der gleichen Größenordnung beobachtet werden, mit ebenfalls leichten Abweichungen der Raten insbesondere zwischen geraden und ungeraden Resonatormoden.

Weitere spektroskopische Untersuchungen haben darüber hinaus gezeigt, dass die Gütefaktoren der Moden von M3 und M7-Resonatoren bei einer spektralen Verschiebung um beispielsweise 5 nm um bis zu 10% reduziert werden können. Für die untersuchten M0-Resonatoren wurde jedoch bei einer derartigen Verschiebung im Gegensatz dazu keine signifikante Verminderung der Gütefaktoren beobachtet. Eine spektrale Verschiebung der Resonatormode über eine Distanz von sogar mehr als 100 nm konnte ebenfalls zumindest für M3 und M7-Resonatoren erfolgreich demonstriert werden, derart große Verschiebungen durch Gasanlagerung gingen jedoch stets mit einem noch deutlicheren Rückgang der Gütefaktoren um bis zu 50% einher.

Abschließend ist noch anzumerken, dass auch die hier beschriebene Abstimmungstechnik per Gasanlagerung ein reversibler Prozess ist. Wurde die Probe etwa zum erneuten Herstellen einer sauerstoffterminierten Oberfläche auf eine Temperatur von 400 °C in Luftatmosphäre erhitzt, so befand sich diese im Anschluss stets wieder in ihrem Ausgangszustand vor der Gasanlagerung.

Abstimmung der Fundamentalmode eines M0-Resonators auf die NV-ZPL

Im Folgenden wird sich auf den am besten geeigneten M0-Resonator beschränkt, der mit halber Optimaldosis implantiert wurde und lediglich zwei Linien im Spektrum um 638 nm aufweist (Abbildung 8.4d). Bei diesem Resonator ist folglich mit der geringsten Anzahl an erzeugten NV-Zentren unter allen implantierten Nanostrukturen zu rechnen, darüber hinaus liegt die Fundamentalmode spektral in der Nähe der Nullphononenlinie der NV-Zentren mit einem für die angestrebte Kopplung vielversprechenden Gütefaktor von $Q = 2060 \pm 50$.

Zur Abstimmung auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren musste die spektrale Position der Fundamentalmode des untersuchten M0-Resonators um etwa 10 nm hin zu kürzeren Wellenlängen angepasst werden. In 25 Prozessschritten, die jeweils aus einem Oxidationsvorgang in Luftatmosphäre mit anschließender Kontrolle der spektralen Modenposition bestanden, wurde die Fundamentalmode zunächst blauverschoben. Nach erneuter Reinigung im beschriebenen Drei-Säuren-Mix aus Schwefelsäure, Salpetersäure und Perchlorsäure wies die Resonatormode eine resultierende Wellenlänge von 634 nm auf. Im Anschluss daran erfolgte die Feinabstimmung auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren durch Gasanlagerung. Dazu wurde der Resonator bei Raumtemperatur und einem Druck in der Probenkammer des Kryostaten von $2 \cdot 10^{-4}$ mbar kontinuierlich bei einer Laserleistung von 1,5 mW bestrahlt. Nach zwei Stunden war die finale Zielposition der Fundamentalmode bei 637,4 nm erreicht, die erzielte Verschiebungsrates betrug

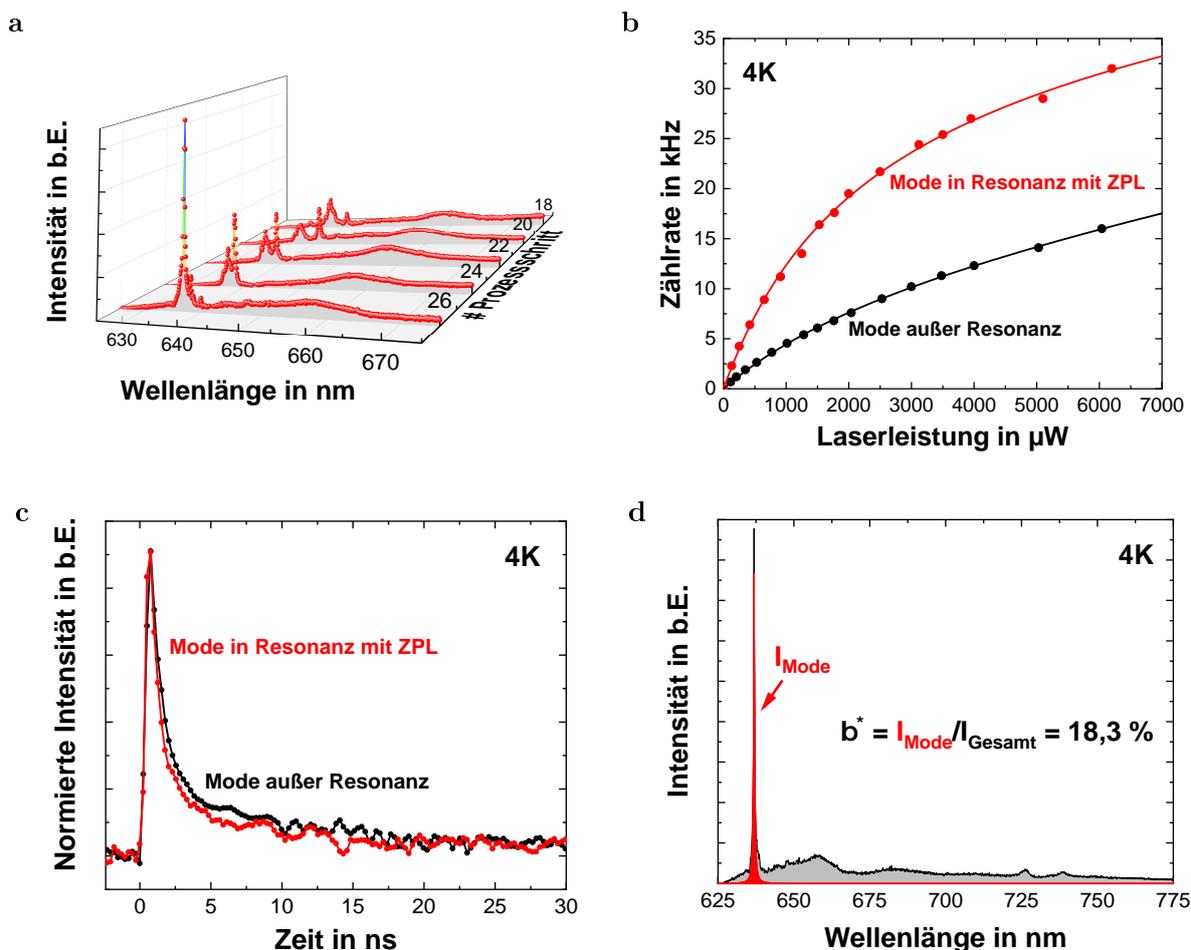


Abbildung 8.6: Abstimmung der Fundamentalmode eines M0-Resonators auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren. (a) Auftragung der Photolumineszenzspektren während der Abstimmung nach verschiedenen Prozessschritten. (b) Vergleich der Sättigungsmessung in Resonanz (rot) mit einer Sättigungsmessung außer Resonanz (schwarz) sowie (c) Vergleich der Lebensdauermessung in Resonanz (rot) mit einer Lebensdauermessung außer Resonanz (schwarz). Bei den Messungen außer Resonanz wies die Mode eine zur NV-ZPL blauverschobene Wellenlänge von 634 nm auf. Die Photonen wurden in einem Filterfenster um 638 nm mit Breite 2,5 nm detektiert. (d) Photolumineszenzspektrum zur Abschätzung des Emissionsanteils in die Fundamentalmode. Die Fläche unter der Lorentzkurve (rot) verhält sich zur Fläche unter der gesamten Kurve (grau+rot) wie die jeweiligen Intensitäten. Die Anregung erfolgte jeweils bei einer Wellenlänge von 532 nm.

somit etwa 1,8 nm/h. Die Fundamentalmode wies nach erfolgter Abstimmung einen nahezu unveränderten Gütefaktor von $Q = 2021 \pm 25$ auf.

Anhand der während des Abstimmungsprozesses aufgenommenen Photolumineszenzspektren lässt sich erkennen, dass die Intensität der Nullphononenlinie aufgrund der durchgeführten Abstimmung der Resonatormode stark überhört wird (Abbildung 8.6a). Auch die in einem 2,5 nm breiten Filterfenster um die Nullphononenlinie gemessenen leistungsabhängigen Zählraten nehmen durch die erfolgte Abstimmung der Resonatormode zu, die Sättigungszählrate erhöht sich

beispielsweise um einen Faktor 2,8 von 13,6 kHz auf 37,5 kHz (Abbildung 8.6b). Darüber hinaus verkürzt sich die Lebensdauer der Farbzentren von 9,0 ns bei einer spektralen Position der Mode von 634 nm auf 8,0 ns in Resonanz mit der Nullphononenlinie der NV-Zentren bei 637,4 nm (Abbildung 8.6c). Zur Bestimmung der Lebensdauern wurden nach Anregung mit einem Laserpuls Spektren des zeitabhängigen Fluoreszenzabfalls mithilfe eines Einzelphotonenzählers (siehe Kapitel 5) aufgenommen, die durch eine doppelt exponentielle Funktion angepasst werden konnten. Neben der Lebensdauer des angeregten Zustands der NV-Zentren lieferte diese Modellierung stets auch noch eine zweite Zeitkonstante, die in der Größenordnung von etwa 1 ns liegt und der schnell abklingenden Emission durch weitere Emitter in der Diamantmembran (Untergrund) zugeschrieben werden kann. Die durch das Abstimmen der Resonatormode erzielte Verkürzung der Lebensdauer der NV-Zentren kann jedoch die in dem gewählten Filterfenster beobachtete Erhöhung der Sättigungszahlrate nur zum Teil erklären. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass durch das Abstimmen der Fundamentalmode nicht nur die Emissionsrate insgesamt, sondern zusätzlich auch der Anteil der in die Nullphononenlinie und somit auch der Anteil der in das beschriebene Filterfenster emittierten Photonen an der gesamten NV-Emission erhöht wird.

Der Emissionsanteil in die Mode sowie der resultierende Purcell-Faktor können ebenfalls anhand der aufgenommenen Photolumineszenzspektren abgeschätzt werden. Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Sammeleffizienz der emittierten Photonen wellenlängenabhängig ist und insbesondere bei der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode einen verminderten Wert aufweist (siehe Kapitel 7), ergibt sich der Kopplungsfaktor der spontanen Emission zu $\beta^* = I_{\text{Mode}}/I_{\text{Gesamt}} = 18,3\%$ (Abbildung 8.6d). Da NV-Zentren üblicherweise Debye-Waller-Faktoren um 3% aufweisen, kann daraus geschlossen werden, dass durch die erfolgte Resonatorkopplung ein deutlich erhöhter Anteil der Photonen über die Nullphononenlinie der NV-Zentren emittiert wird. Die im Vergleich zur Erhöhung der Sättigungszahlrate um einen Faktor 2,8 hier bestimmte größere Erhöhung kann durch ein für die Sättigungsmessungen eingesetztes, mit 2,5 nm im Vergleich zur ZPL-Breite immer noch sehr breites Filterfenster sowie der Tatsache, dass das wellenlängenabhängige Verhalten der Sammeleffizienz zwar für den β^* -Faktor berücksichtigt wurde, aber nicht in den Sättigungsmessungen mit einfließt, erklärt werden. Aus dem ermittelten β^* -Faktor kann mithilfe von Gleichung (3.34) schließlich auch der generalisierte Purcell-Faktor ermittelt werden, der sich hier zu $F^* = 0,224$ ergibt.

Eine direkte Messung der Lebensdauer der NV-Zentren ohne Einfluss des Resonators ist aufgrund der gewählten Vorgehensweise der nachträglichen Implantation in die bereits hergestellten Nanostrukturen zwar grundsätzlich unmöglich, die Kenntnis des Purcell-Faktors erlaubt jedoch zumindest die Abschätzung dieser Größe. Für die durch eine Emitter-Resonator-Kopplung bedingte Änderung $\Delta\gamma$ der Emissionsrate eines Farbzenters γ gilt nach Gleichung (3.31) $\Delta\gamma = F^* \cdot \gamma$. Da die betrachteten NV-Zentren in Resonanz eine Lebensdauer von 8,0 ns aufweisen und der generalisierte Purcell-Faktor zu $F^* = 0,224$ bestimmt wurde, ergibt sich mit Gleichung (3.31) eine abgeschätzte Lebensdauer ohne Einfluss der Resonatormode von 9,8 ns. In diesem Zusammenhang sei angemerkt, dass sich die Mode des M0-Resonators bei der zuvor gemessenen Lebensdauer von 9,0 ns zwar außer Resonanz der ZPL, aber immer noch in Resonanz mit dem phononischen Seitenband der NV-Zentren befand.

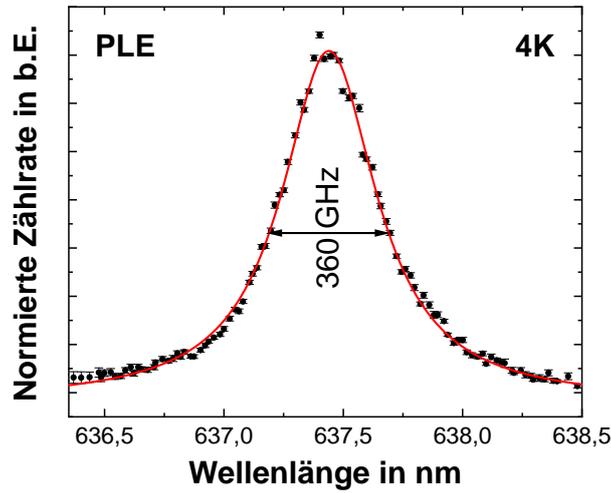


Abbildung 8.7: Photolumineszenzanregungsspektrum des M0-Resonators im Wellenlängenbereich der NV-ZPL. Die in einem Filterfenster von 650 nm bis 750 nm gemessenen Zählraten wurden jeweils auf die momentane Leistung des verwendeten durchstimmbaren Diodenlasers normiert und durch eine Lorentzkurve angepasst.

Um die Nullphononenlinien der NV-Zentren trotz vorliegender Resonanz mit der Fundamentalmode des M0-Resonators analysieren zu können, wurde zusätzlich ein Photolumineszenzanregungsspektrum im Wellenlängenbereich von 636,2 nm bis 638,5 nm aufgenommen (Abbildung 8.7). In diesem Spektrum ist zunächst auffällig, dass nur noch eine der beiden im Photolumineszenzspektrum in Abbildung 8.4d zuvor detektierten Linien zu erkennen ist und zwar diejenige, auf die die Mode abgestimmt wurde. Die verbliebene Linie weist im PLE-Spektrum eine Halbwertsbreite von 360 GHz auf, in guter Übereinstimmung mit dem vor dem Abstimmungsprozess im PL-Spektrum ermittelten Wert von 370 GHz. Eine mögliche Ursache für das Verschwinden der zweiten Linie könnte eine Konversion der zugehörigen NV-Zentren in den neutralen Ladungszustand sein. Da die Emissionslinie jedoch auch nach einem weiteren Säurebad und Erhitzen in Luftatmosphäre zur erneuten Gewährleistung einer sauerstoffterminierten Oberfläche in anschließenden spektroskopischen Untersuchungen nicht detektiert werden konnte, ist davon auszugehen, dass die zugehörigen NV-Zentren so oberflächennah erzeugt wurden, dass diese durch die zur Abstimmung erforderlichen Oxidationsschritte in Luftatmosphäre entfernt wurden.

Abschließend wurde die Emission aus der Resonatorfläche des M0-Resonators erneut mithilfe der Autokorrelationsfunktion $g^2(\tau)$ auf Einzelphotonencharakter hin untersucht. Die Autokorrelationsfunktion zeigt trotz der Tatsache, dass nur noch eine Emissionslinie im Spektrum zu erkennen ist weiterhin keinen Einbruch der Anzahl an detektierten Photonen für $\tau = 0$. Daher kann geschlossen werden, dass die verbliebene Emissionslinie bei 637,4 nm durch die Nullphononenlinien von weiterhin mindestens zehn NV-Zentren (siehe auch Abschnitt 8.1.2) gebildet wird. Des Weiteren ist davon auszugehen, dass die Emissionslinien der einzelnen NV-Zentren zusätzlich durch spektrale Diffusion, verursacht durch Ladungsträgereinschlüsse in der Nähe der Farbzentren [178, 284], verbreitert sind. Diese Deutung deckt sich auch mit den Erkenntnissen weiterer Untersuchungen, so konnten beispielsweise unter grüner Laseranregung in Diamantnanokristallen

spektrale Sprünge zwischen 20 GHz bis hin zu 260 GHz gemessen werden [188]. Auch für oberflächennah implantierte NV-Zentren wurden bereits Linienbreiten bis hin zu 468 GHz gemessen und die Linienverbreiterung der spektralen Diffusion zugeschrieben [89]. Für die im betrachteten M0-Resonator erzeugten NV-Zentren kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass die Emissionslinie im PLE-Spektrum der Halbwertsbreite 360 GHz auf die Nullphononenlinien mehrerer NV-Zentren zurückzuführen ist, die selbst wiederum aufgrund der spektralen Diffusion Linienbreiten in dieser Größenordnung aufweisen.

8.2.2 Vergleich mit einem Ratengleichungsmodell

Liegt ein einzelnes NV-Zentrum ohne umgebenden Resonator vor, etwa in einem Nanodiamanten oder auch in einer Diamantmembran, so kann das zugehörige Emissionsspektrum durch acht Lorentzkurven angepasst und aus den deduzierten Anpassungsparametern die Dephasierungsrate γ^* , die Relaxationsraten in den Grundzustand $\gamma_{i,i-1}$ sowie die relativen Stärken e_i der einzelnen Übergänge ermittelt werden [149,201]. Diese Parameter erlauben im Anschluss zusammen mit den Kenndaten einer Resonatormode die Lösung der Ratengleichungen und somit insbesondere die Bestimmung des zu erwartenden wellenlängenabhängigen Purcell-Faktors bei einer Kopplung des breitbandigen Emitters an diese Mode (siehe Kapitel 3). Da die NV-Zentren nach Implantation von Stickstoffionen in bereits hergestellte Resonatoren erzeugt wurden, ist jedoch für die Emittter im betrachteten M0-Resonator kein Emissionsspektrum ohne Einfluss der Nanostruktur verfügbar. Dennoch kann zumindest eine näherungsweise Bestimmung der zur Lösung der Ratengleichungen erforderlichen NV-Emissionsparameter erfolgen, wie im Folgenden dargelegt wird.

Bestimmung der Emissionsparameter der NV-Zentren

In Abbildung 8.8a ist ein Emissionsspektrum abgebildet, das zwischen zwei Oxidationsschritten aufgenommen wurde. Die Fundamentalmode des M0-Resonators befindet sich rotverschoben zur Nullphononenlinie der NV-Zentren. Da Mode und oberflächennah implantierte Farbzentren abweichende Fokuspunkte in z -Richtung aufweisen, konnte die Justage so gewählt werden, dass die NV-Zentren möglichst gut im Spektrum hervortreten und die Mode gleichzeitig einen möglichst geringen Einfluss auf das Spektrum hat. Da zusätzlich die Kenndaten der Mode wie etwa der Gütefaktor und somit auch die Halbwertsbreite bekannt sind, kann aufgrund der erfolgten spektroskopischen Untersuchung das Emissionsspektrum der NV-Zentren ohne Einfluss des Resonators abgeschätzt und durch acht Lorentzkurven angepasst werden.

Die aus den einzelnen Lorentzkurven ermittelten Parameter der NV-Emission sind in Tabelle 8.1 zusammengefasst. Die zugehörigen Zentralwellenlängen stimmen mit den in früheren Untersuchungen ermittelten spektralen Positionen für NV-Zentren in Nanodiamanten sowie in Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen gut überein [89,149,201]. Auch die Linienbreiten, die üblicherweise starken Schwankungen unterworfen sind, bewegen sich im Rahmen zuvor ermittelter Werte [201]. Darüber hinaus weist die an die NV-ZPL angepasste Lorentzkurve mit 2,1 % eine typische relative Stärke auf, in der Literatur wird üblicherweise von Debye-Waller-Faktoren

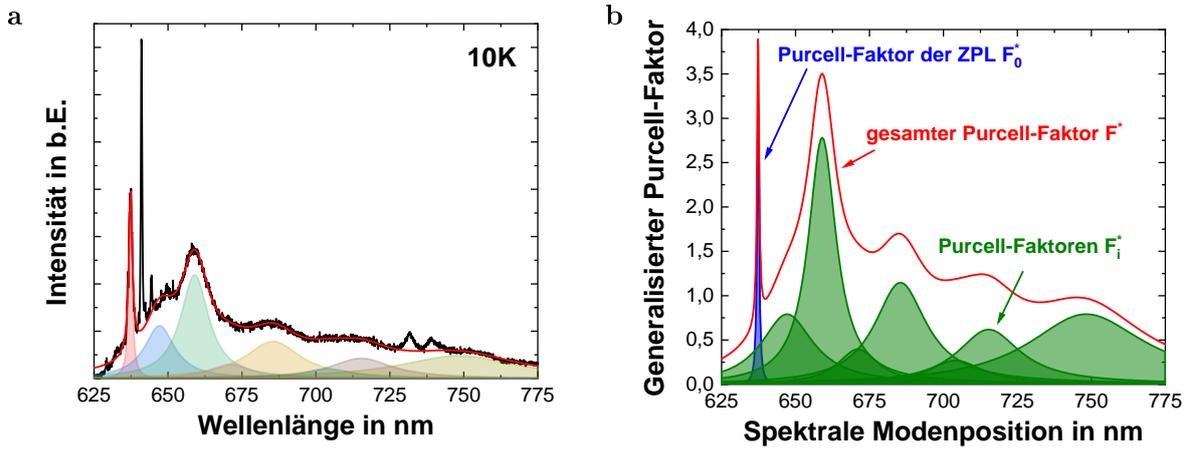


Abbildung 8.8: (a) Photolumineszenzspektrum des M0-Resonators (schwarze Linie) nach Erzeugung der NV-Zentren. Die Resonatormode weist nach bereits erfolgten ersten Abstimmungsschritten per Oxidation eine Wellenlänge von 641 nm auf. Nach Abschätzung des reinen NV-Spektrums ohne Resonatormode wurde das Spektrum durch acht Lorentzkurven angepasst. Zusätzlich ist im Spektrum die Summe dieser Lorentzkurven (rot) eingezeichnet. (b) Generalisierter Purcell-Faktor als Funktion der spektralen Position der Fundamentalmode des M0-Resonators. Mithilfe des Ratengleichungsmodells wurden der generalisierte Purcell-Faktor des ZPL-Übergangs F_0^* (blau), der Seitenbandübergänge F_i^* (grün) sowie der gesamte generalisierte Purcell-Faktor F^* (rot) für eine Mode mit Gütefaktor $Q = 2021$ und Modenvolumen $V = 0,4 (\lambda/n)^3$, den ermittelten Parametern aus Tabelle 8.1 sowie $\gamma^* = 2\pi \cdot 360 \text{ GHz}$, $\gamma = 102 \text{ MHz}$ und $\kappa = 1,462 \text{ THz}$ berechnet.

zwischen 2 % [149] bis hin zu 4 % [150] berichtet. Lediglich die relativen Stärken einzelner Seitenbandlinien weichen leicht von den in der Literatur berichteten Werten ab [201].

An dieser Stelle sei angemerkt, dass das gemessene und durch die Lorentzkurven angepasste Spektrum lediglich einen Durchschnitt der Spektren der einzelnen erzeugten NV-Zentren darstellt. Daher steckt in den ermittelten Parametern in Tabelle 8.1 implizit die Annahme, dass

NV-Emission im betrachteten M0-Resonator

Übergang i	λ_i in nm	ν_i in THz	$\Delta\nu_i$ in THz	e_i in %	γ_i in MHz	$\gamma_{i,i-1}$ in THz
0	637,4	470,6	0,36	2,1	2,19	0
1	646,2	464,3	15,1	13	13,7	92,4
2	659,2	455,1	7,70	25	25,0	46,1
3	671,6	446,7	10,9	4,9	4,98	66,5
4	685,5	437,6	13,4	17	17,8	82,1
5	703,4	426,5	13,5	4,1	4,17	82,3
6	715,4	419,4	15,0	10	10,7	91,8
7	748,5	400,8	25,6	22	23,2	158

Tabelle 8.1: Ermittelte Parameter der NV-Emission nach Anpassung des abgeschätzten NV-Spektrums durch acht Lorentzkurven (siehe auch Abbildung 8.8a).

alle NV-Zentren im Resonator das gleiche Seitenbandspektrum sowie das gleiche ZPL-Spektrum besitzen. Da Farbzentren jedoch insbesondere in verspannten Diamantproben leicht voneinander abweichende Emissionseigenschaften zeigen, kann davon ausgegangen werden, dass einzelne Lorentzkurven im Vergleich zur Emission eines einzelnen Emitters eine erhöhte Breite oder auch einen erhöhten Flächenanteil aufweisen mit folglich ebenfalls erhöhten zugehörigen Abklingraten γ_i und Relaxationsraten $\gamma_{i,i-1}$. Darüber hinaus wird das Spektrum und folglich auch die einzelnen Lorentzkurven durch die breitbandige Emission von ebenfalls angeregten Untergrundemittern beeinflusst. Aufgrund der veränderten Abstrahlcharakteristik im Bereich der photonischen Kristallstruktur tritt der Untergrund im Resonator sogar stärker als auf der umliegenden Diamantmembran hervor und ist ferner aufgrund der erfolgten FIB-Strukturierung zusätzlich erhöht. Des Weiteren hat die insbesondere für Wellenlängen innerhalb und außerhalb der photonischen Bandlücke abweichende Sammeleffizienz (siehe Kapitel 7) einen Einfluss auf die relativen Intensitäten im Spektrum und somit auch auf die ermittelten Parameter der NV-Emission.

Wird für die implantierten NV-Zentren im betrachteten M0-Resonator eine ZPL-Halbwertsbreite von $\Delta\nu = 360$ GHz angesetzt, so ergibt sich eine Dephasierungsrate von $\gamma^* = 2\pi \cdot \Delta\nu = 2,26$ THz. Hierbei wird davon ausgegangen, dass die für die spektrale Diffusion verantwortlichen Sprünge der NV-ZPL wesentlich kleinere Zeitkonstanten aufweisen als die Lebensdauer des angeregten Zustands und die spektrale Diffusion folglich durch eine reine Dephasierungsrate beschrieben werden kann (siehe Kapitel 3). Da die Lebensdauer der NV-Zentren ohne Einfluss des Resonators zu 9,8 ns abgeschätzt wurde, ergibt sich ferner eine zugehörige spontane Emissionsrate von $\gamma = 102$ MHz. Des Weiteren kann aus dem Gütefaktor der Resonatormode mit $Q = 2021$ und der zugehörigen Resonanzwellenlänge mit $\omega_R = 637,4$ nm die Abklingrate der Resonatorphotonen zu $\kappa = \omega_R/Q = 1,462$ THz berechnet werden. Der ermittelte Gütefaktor sowie das simulierte Modenvolumen der Fundamentalmode des M0-Resonators mit $V = 0,4 (\lambda/n)^3$ erlauben wiederum zusammen mit Gleichung (3.25) die Berechnung des Kopplungsfaktors der Emitter-Resonator-Kopplung zu $g = 120$ GHz. Es gilt folglich $\kappa \gg g > \gamma$, die Emitter-Resonator-Kopplung erfolgt somit wie angenommen im Regime der schwachen Kopplung. Mithilfe dieser abgeleiteten Größen können auch die in Tabelle 8.1 angegebenen Abklingraten γ_i und Relaxationsraten $\gamma_{i,i-1}$ für die NV-Zentren sowie die Kopplungsfaktoren g_i bestimmt werden.

Bestimmung der generalisierten Purcell-Faktoren

Die ermittelten Parameter erlauben die Berechnung der generalisierten Purcell-Faktoren durch Einsetzen in die Gleichungen (3.60), (3.61) und (3.62). Jedem möglichen Seitenbandübergang wird ein eigener Purcell-Faktor F_i^* zugeordnet, der mit der zugehörigen Übergangsrate R_i zwischen Emitter und Resonator über die Beziehung $F_i^* = R_i/\gamma$ zusammenhängt, analog wird dem ZPL-Übergang ein Purcell-Faktor $F_0^* = R_0/\gamma$ mit der Übergangsrate R_0 zugewiesen (siehe Kapitel 3). In Abbildung 8.8b sind die Purcell-Faktoren der einzelnen Übergänge sowie der resultierende gesamte Purcell-Faktor für den betrachteten M0-Resonator dargestellt. Der Purcell-Faktor zeigt ein von der Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode abhängiges Verhalten und nimmt bei einer spektralen Modenposition von 637,4 nm, der Wellenlänge der Nullphononenlinie der

NV-Zentren, mit $F^* = 3,9$ sein Maximum an. Dieser Wert ist jedoch um einen Faktor 17 größer als der zuvor ermittelte experimentelle Wert mit $F_{\text{exp}}^* = 0,224$. Um im Experiment gemessene generalisierte Purcell-Faktoren zuverlässig reproduzieren zu können, muss das verwendete Ratengleichungsmodell offensichtlich noch modifiziert werden.

In der erfolgten theoretischen Modellierung wurde zum einen stets davon ausgegangen, dass die NV-Zentren optimal zur Resonatormode ausgerichtet sind. Wie bereits in Kapitel 7 ausführlicher dargelegt wurde, ist dies jedoch für die NV-Dipole in einer Probe mit (001)-Oberfläche nicht der Fall, die Projektion auf die Polarisationsrichtung der Resonatormode beträgt im Mittel lediglich 24%. Da die relative Orientierung eines Dipolemitters zum Modenfeld nach Gleichung (3.45) linear in den Purcell-Faktor einfließt, wird unter Berücksichtigung dieser mittleren Dipolorientierung der theoretisch bestimmte Purcell-Faktor für das vorliegende schwache NV-Ensembles um einen Faktor 4 vermindert. Des Weiteren wurde bislang im Modell von einer Quanteneffizienz von eins ausgegangen, gemessene Quanteneffizienzen von NV-Zentren schwanken jedoch stark und können Werte bis hinunter zu 10% annehmen [285]. In Untersuchungen an Nanokristallen konnte die Verminderung der vorliegenden Quanteneffizienz auf die Nähe der NV-Zentren zur Oberfläche zurückgeführt werden [285]. Für in Volldiamantmaterial oberflächennah implantierte Emitter wurden Quanteneffizienzen zwischen 0,7 und 0,82 gemessen [286], die aufgrund der durch die FIB-Strukturierung verminderten Diamantqualität für die NV-Zentren in den Resonatoren eher eine Obergrenze darstellen. Zwischen Quanteneffizienz und generalisiertem Purcell-Faktor besteht ebenfalls ein linearer Zusammenhang [89]. Wird für die im betrachteten M0-Resonator inkorporierten NV-Zentren eine mittlere Quanteneffizienz von $\eta = 0,7$ angenommen, so wird der ermittelte generalisierte Purcell-Faktor folglich für alle spektralen Positionen der Mode und insbesondere in Resonanz mit der Nullphononenlinie der NV-Zentren um einen Faktor 1,4 reduziert. Ferner führt die durchgeführte oberflächennahe Implantation von Stickstoffionen zu einem nicht perfekten Überlapp zwischen Dipolmomenten der NV-Zentren und elektrischem Feld der Resonatormode. Für eine Implantationstiefe von 5 nm wird der Purcell-Faktor dadurch nach Gleichung (3.45) beispielsweise um einen simulierten Faktor von 4,0 reduziert, für eine Tiefe von 15 nm um 3,2 und selbst für eine Tiefe von 50 nm noch um einen simulierten Faktor von 1,7. Für die hier bei einer Implantationsenergie von 5 keV erzielte Implantationstiefe von etwa 23 nm wird der Purcell-Faktor um einen simulierten Faktor von 2,5 vermindert. Des Weiteren kann auch die laterale Auflösung der AFM-Implantationen von hier 74 nm den generalisierten Purcell-Faktor beeinflussen. Wird im Grenzfall davon ausgegangen, dass die NV-Zentren alle im Randbereich der AFM-Apertur implantiert wurden, so sagen Simulationen eine Reduktion des Purcell-Faktors um einen Faktor von bis zu 2 voraus.

Während die für das untersuchte NV-Ensemble angenommene mittlere Dipolorientierung sowie die erzielte Implantationstiefe als zuverlässige Werte angesehen werden können, kann hingegen die Quanteneffizienz der in die Resonatoren implantierten NV-Zentren auch durchaus kleiner als $\eta = 0,7$ sowie die erzielte laterale Positionierung der erzeugten NV-Zentren auch durchaus besser als die Auflösung der AFM-Implantationen von 74 nm sein. Wird für den Einfluss der Quanteneffizienz sowie der begrenzten lateralen Positionierbarkeit zusammen ein Faktor von 1,7 angenommen, so ergibt sich ein gesamter Korrekturfaktor von 17, der mithilfe des Ratenglei-

chungsmodells vorhergesagte generalisierte Purcell-Faktor kann somit in Einklang mit dem zuvor experimentell ermittelten Wert von $F_{\text{exp}}^* = 0,224$ gebracht werden. Der Vollständigkeit wegen ist noch anzumerken, dass nach Gleichung (3.45) auch eine ungenaue spektrale Positionierung der Resonatormode den Purcell-Faktor zusätzlich vermindern könnte. Aufgrund der eingesetzten präzisen Abstimmungstechniken kann hier jedoch von einer optimalen spektralen Abstimmung der Mode auf die NV-ZPL ausgegangen werden.

Mithilfe des eingeführten Ratengleichungsmodells lässt sich ferner abschätzen, welche generalisierten Purcell-Faktoren durch Resonatormoden mit größeren Gütefaktoren oder auch durch NV-Zentren mit schmalere ZPL-Halbwertsbreiten theoretisch erreichbar wären. Bei einer angenommenen idealen Quanteneffizienz, idealen Dipolorientierung sowie idealen Positionierung wäre für unsere NV-Zentren bei der betrachteten Resonatormode mit $Q = 2021$ wie angesprochen ein Purcell-Faktor von $F^* = 3,9$ bei einer spektralen Modenposition von 637,4 nm zu erwarten. Hätte die Mode hingegen einen Gütefaktor von $Q = 8250$, der im Rahmen dieser Arbeit für die Fundamentalmode eines weiteren hergestellten M0-Resonators experimentell erzielt wurde, so würde sich ein generalisierter Purcell-Faktor von $F^* = 5,3$ ergeben. Bei weiterer Zunahme des Gütefaktors würde die Steigerungsrate stagnieren und der Purcell-Faktor gegen einen Grenzwert von $F^* = 5,9$ streben. Während NV-Zentren, die in photonische Kristallstrukturen in dünnen Diamantmembranen implantiert wurden Nullphononenlinien mit Breiten von durchaus mehreren hundert Gigahertz aufweisen, wurden für oberflächennah implantierte NV-Zentren in Volldiamantmaterial bereits ZPL-Halbwertsbreiten in der Größenordnung von 10 GHz gemessen [284]. Wird eine zugehörige Dephasierungsrate von lediglich $\gamma^* = 2\pi \cdot 10 \text{ GHz} = 63 \text{ GHz}$ bei sonst unveränderten NV-Emissionsparametern in der Modellierung angenommen, so würde sich ein Purcell-Faktor von $F^* = 12$ für $Q = 8250$ bzw. $F^* = 6,4$ für $Q = 2021$ ergeben.

Diese Ergebnisse lassen die Schlussfolgerung zu, dass der maximal erreichbare generalisierte Purcell-Faktor durch Parameter der NV-Zentren wie etwa die Quanteneffizienz oder auch die ZPL-Halbwertsbreite wesentlich stärker limitiert ist als durch Parameter der Mode wie etwa den Gütefaktor, eine hinreichende spektrale Abstimmung stets vorausgesetzt. Darüber hinaus stellen die erzielte laterale und vertikale Positionierung sowie die Dipolorientierung der NV-Zentren relativ zum Modenfeld entscheidende Einschränkungen dar.

8.3 Zusammenfassung und Ausblick

Im vorliegenden Kapitel wurde zunächst die Erzeugung von NV-Zentren in bereits hergestellten Resonatoren in photonischen Kristallstrukturen dargelegt. Die Implantation der Stickstoffionen erfolgte mithilfe einer hochauflösenden Technik, bei der die Oberfläche der Diamantprobe durch eine strukturierte AFM-Spitze maskiert wurde. AFM-Abrasterungen der Resonatoren ermöglichten eine als Apertur genutzte Öffnung in der AFM-Spitze präzise über dem Feldmaximum einer Resonatormode auszurichten. Die erläuterten Nachbehandlungsmaßnahmen gewährleisteten anschließend die Bildung von NV-Zentren sowie deren Konvertierung in den angestrebten negativen Ladungszustand. In durchgeführten optischen Analysen konnte nachgewiesen werden, dass in al-

len implantierten Nanostrukturen im Bereich der Resonatorflächen NV-Zentren mit durch spektrale Diffusion inhomogen verbreiterten Nullphononenlinien mit Halbwertsbreiten von wenigen hundert Gigahertz erzeugt wurden und darüber hinaus der AFM-Auslegerarm eine hinreichende Abschirmung für die umliegenden Bereiche bot. Ferner konnte aufgrund erfolgter Messungen die Schlussfolgerung gezogen werden, dass in den Resonatorflächen stets mehrere NV-Zentren erzeugt wurden, selbst wenn in Emissionsspektren nur eine einzige, wenige hundert Gigahertz breite Linie im Bereich der NV-ZPL zu erkennen war.

Darüber hinaus wurden in diesem Kapitel zwei Abstimmungstechniken dargelegt, die sich gegenseitig ergänzen und in Kombination die deterministische Abstimmung einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie der in die Resonatorfläche implantierten NV-Zentren ermöglichten. Die Fundamentalmode eines M0-Resonators mit Gütefaktor $Q = 2060$ konnte zunächst durch Oxidation blauverschoben und im Anschluss durch Anlagerung von Restgasmolekülen unter parallel erfolgender spektroskopischer Kontrolle gezielt bis zur Resonanz mit der NV-ZPL rotverschoben werden, ohne signifikante Verminderung des Gütefaktors. Im Vergleich zu einer spektralen Modenposition von 634 nm konnte die ZPL-Intensität in Resonanz deutlich erhöht, die Sättigungszählrate in einem schmalen Filterfenster um die ZPL um einen Faktor 2,8 gesteigert und die NV-Lebensdauer von 9,0 ns auf 8,0 ns verkürzt werden. Anhand der spektralen Intensitätsverteilung konnte ferner ein Kopplungsfaktor der spontanen Emission von $\beta^* = 18,7\%$ sowie ein generalisierter ZPL Purcell-Faktor von $F^* = 0,224$ in Resonanz ermittelt werden.

Des Weiteren wurde das in Kapitel 3 eingeführte Ratengleichungsmodell zur Bestimmung des theoretisch zu erwartenden generalisierten Purcell-Faktors eingesetzt. Dazu wurde das Emissionsspektrum der implantierten NV-Zentren ohne Einfluss des M0-Resonators abgeschätzt und die für die Modellierung benötigten Parameter der NV-Emission durch Anpassung des Spektrums durch acht Lorentzkurven ermittelt. Unter Berücksichtigung der mittleren Dipolorientierung, der verminderten Quanteneffizienz sowie der erzielten lateralen und vertikalen Positionierung der NV-Zentren konnte der durch das theoretische Modell vorhergesagte ZPL Purcell-Faktor für das vorliegende schwache NV-Ensemble in Einklang mit dem ermittelten experimentellen Wert gebracht werden. Die Anwendung des Ratengleichungsmodells bot ferner die Möglichkeit, Limitierungen des erzielten Purcell-Faktors zu untersuchen. Dabei zeigte sich, dass die Eigenschaften der NV-Zentren wie die Halbwertsbreite der Nullphononenlinie oder die Quanteneffizienz den generalisierten Purcell-Faktor stärker beeinflussen als der Gütefaktor der Mode und darüber hinaus die laterale und vertikale Positionierbarkeit sowie die relative Orientierung der Emissionsdipole der NV-Zentren zum Modenfeld entscheidende Limitierungen darstellen.

Um in Zukunft einzelne Emittter in bereits hergestellten Nanostrukturen zu erhalten, müssten die Ionendosen in weiteren Implantationsserien schrittweise verringert werden. Die garantierte Erzeugung eines einzelnen NV-Zentrums in der Resonatorfläche ist jedoch selbst bei einer optimal gewählten Implantationsdosis aufgrund des stochastischen Charakters der Stickstoffimplantation sowie der anschließenden Erzeugung der NV-Zentren prinzipiell nicht möglich.

Alternativ könnten in Zukunft in einer Diamantmembran erzeugte Emittter zunächst optisch charakterisiert und im Anschluss daran die photonischen Kristallstrukturen um geeignete einzelne Farbzentren herum gefertigt werden, wie zumindest für SiV-Zentren bereits erfolgreich demons-

triert wurde [237]. Da bei diesem Zugang die laterale Positionierung der vorhandenen Farbzentren zunächst nicht von Relevanz ist, könnten größere Implantationsenergien gewählt werden, die die Verortung der Fremdatome in der Mitte der Diamantmembran und somit auch vertikal im Bereich der Feldmaxima potenzieller Resonatormoden erlauben würden. Durch Implantation von Stickstoffionen mit dazu erforderlichen Energien von etwa 85 keV konnten darüber hinaus bereits NV-Zentren mit ZPL-Halbwertsbreiten von 28 MHz und somit in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite erzeugt werden [268], wohingegen für oberflächennah erzeugte Emittter lediglich Halbwertsbreiten bis hinunter zu 10 GHz gemessen wurden [284]. Darüber hinaus versprechen derart tief implantierte Emittter eine größere Photostabilität sowie eine gesteigerte Quanteneffizienz. Wird zusätzlich als Ausgangsmaterial eine Diamantmembran mit (111)-Ebene als Oberfläche verwendet, so könnte der Purcell-Faktor bei einer potenziellen Emittter-Resonator-Kopplung noch weiter gesteigert werden, da geeignete NV-Dipole in einer derartigen Probe eine für die potenzielle Kopplung optimale Orientierung aufweisen.

Statt Stickstoffionen in eine derartige Diamantmembran zu implantieren, könnten die Emittter alternativ bereits während des CVD-Wachstums eingebracht werden. Spezielle CVD-Prozesse erlauben sogar die Erzeugung von NV-Zentren, die vorzugsweise eine für die potenzielle Emittter-Resonator-Kopplung optimale Dipolorientierung in der Membranebene aufweisen [287, 288], wohingegen die resultierenden Orientierungen der Dipole bei implantierten Farbzentren stets stochastisch verteilt sind. Die Ausbeute an optimal ausgerichteten NV-Dipolen könnte durch die Verwendung von eingewachsenen Farbzentren folglich weiter erhöht werden.

Trotz der angeführten Argumente, die für die dargelegte Variation der Herstellungsreihenfolge sprechen, weist die Implantation von Stickstoffionen durch eine strukturierte AFM-Spitze zum einen den entscheidenden Vorteil auf, dass eine laterale Auflösung der erzeugten Farbzentren relativ zum Feldmaximum einer Resonatormode von bis zu 20 nm erreicht werden kann [271]. Eine Positioniergenauigkeit in dieser Größenordnung ist bei nachträglicher Herstellung eines Resonators um ein bestehendes NV-Zentrum zumindest nach heutigem Stand noch nicht erreichbar. Des Weiteren ermöglichen ausschließlich die hochauflösenden Implantationstechniken die gezielte Erzeugung von Farbzentren in bereits hergestellten Nanostrukturen. Folglich werden hochauflösende Implantationstechniken auch in Zukunft das Mittel der Wahl zur Erzeugung von Farbzentren etwa in Resonatoren in photonischen Kristallen in Diamant mit einer für eine potenzielle Emittter-Resonator-Kopplung hinreichenden lateralen Auflösung bleiben, trotz der im vorliegenden Kapitel aufgezeigten Limitierungen. Sollte jedoch zukünftig die Positionierbarkeit der nachträglich um ein bestehendes Farbzentrum herum hergestellten Nanostrukturen verbessert werden können, so würde dieser Zugang zumindest für ausgewählte Anwendungen eine vielversprechende Alternative zu hochauflösenden Implantationstechniken bieten. Andererseits könnten aber auch die dargelegten Limitierungen der hochauflösenden Implantationstechniken in Zukunft noch umgangen werden, so wurden etwa in den vergangenen Jahren vielversprechende Fortschritte bei der FIB-Implantation von Emitttern gemacht. Zumindst für Siliziumionen konnte der Strahldurchmesser des fokussierten Ionenstrahls auf unter 40 nm reduziert und Siliziumionen bei einer lateralen Auflösung von unter 50 nm mit Energien von 100 keV auch vertikal in Bereichen des Feldmaximums der Moden

9 Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis bei der Spinauslese von NV-Zentren

Die Messungen in Abschnitt 9.2 wurden zusammen mit Johannes Görlitz entwickelt und durchgeführt, die Modellierung mithilfe des Ratengleichungsmodells in Abschnitt 9.2 erfolgte in Zusammenarbeit mit Johannes Görlitz und Benjamin Kambs.

Das Stickstoff-Fehlstellenzentrum zeichnet sich gegenüber weiteren vielversprechenden Quantenemittern durch zahlreiche herausragende Eigenschaften aus, wie etwa die außerordentlich lange Spinkohärenzzeit oder auch die Möglichkeit, den Spinzustand sogar bei Raumtemperatur initialisieren, manipulieren und rein optisch auszulesen zu können. Spinerhaltende optische Übergänge zwischen dem angeregten Zustand und dem Grundzustand sowie ein spinabhängiger nicht-strahlender Übergang (*intersystem crossing*) in einen Singulettzustand mit langer Lebensdauer erlauben eine zuverlässige Spininitialisierung von NV-Zentren in der Spinprojektion $m_s = 0$. Der Spinzustand kann darüber hinaus durch abgestimmte Mikrowellenfelder gezielt manipuliert und ein NV-Zentrum somit auch in der Spinprojektion $m_s = \pm 1$ präpariert werden. Da die Photolumineszenzintensität im $m_s = \pm 1$ -Zustand (*dark state*) aufgrund der höheren Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* signifikant niedriger ist als im $m_s = 0$ -Zustand (*bright state*), kann die vorliegende Spinprojektion rein optisch ausgelesen werden.

Die Schärfe der Unterscheidbarkeit der beiden Spinzustände bei der optischen Spinauslese wird durch das Signal-Rausch-Verhältnis (*signal-to-noise ratio*, SNR) quantisiert. Ein hinreichend großer SNR ermöglicht beispielsweise den Einsatz eines NV-Zentrums als Magnetfeldsensor zur zuverlässigen Detektion von kleinsten Magnetfeldern auf Nanometerskalen [55–57, 289] oder die Überprüfung grundlegender Prinzipien der Quantenmechanik wie etwa durch die Demonstration einer schlupfflochfreien Verletzung der Bellschen Ungleichung erfolgt [72]. Des Weiteren kann ein NV-Zentrum bei einem hinreichend großen Signal-Rausch-Verhältnis zusammen mit dem Kernspin des intrinsischen Stickstoffatoms oder alternativ dem Kernspin eines benachbarten ^{13}C -Atoms, die jeweils durch Kopplung an den Elektronenspin des NV-Zentrums optisch initialisiert und ausgelesen werden können, als Quantenspeicher [66, 290–292] sowie zukünftig auch als Kernkomponente eines Quantenrepeaters [293, 294] eingesetzt werden.

In diesem Kapitel wird untersucht, wie sich die Kopplung der Mode eines Resonators an NV-Zentren auf das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese auswirkt. Das Signal-Rausch-Verhältnis wird in diesem Rahmen als abgeleitete Größe eingeführt, die durch den Photolumineszenzkontrast sowie die Anzahl der bei Laseranregung detektierten Photonen nach Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand festgelegt ist. Die zunächst noch relativ zur NV-ZPL blauverschobene Fundamentalmode eines M0-Resonators in einer photonischen Kristallstruktur

in Diamant mit Gütefaktor $Q = 2060$ wird mithilfe der in Kapitel 8 eingeführten Abstimmungs-techniken auf die Nullphononenlinie des in der Resonatorfläche erzeugten NV-Ensembles abge- stimmt und der Photolumineszenzkontrast vor und nach Abstimmen der Mode ermittelt. Hierzu wird ein kombiniertes Verfahren bestehend aus drei aufeinanderfolgenden Messungen eingesetzt, das die zuverlässige Bestimmung des zeitaufgelösten Photolumineszenzkontrastes ermöglicht. Ein Vergleich der experimentell ermittelten sowie der zusätzlich durch die Anwendung eines Raten- gleichungsmodells theoretisch vorhergesagten Kontraste jeweils vor und nach Abstimmen der Mode wird zeigen, dass der Kontrast durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL im unteren einstelligen Prozentbereich verringert wird. Die ermittelte Abnahme des Kontrastes ermöglicht im Anschluss zusammen mit der ebenfalls ermittelten Erhöhung der detektierten Photonenzahl die Abschätzung der resultierenden Änderung des SNR. Es wird gezeigt werden, dass durch das Abstimmen der Fundamentalmode des M0-Resonators auf die Nullphononenlinie des betrachteten NV-Ensembles eine nahezu Verdreifachung des SNR bei der optischen Spinauslese erzielt werden kann und der SNR darüber hinaus bei einer besseren Emitter-Resonator-Kopplung durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL sogar mehr als versechsfacht werden könnte.

9.1 Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese

Im Rahmen dieser Arbeit wird für das Signal-Rausch-Verhältnis einer optischen Messung, die zwischen den beiden Spinprojektionen $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ eines NV-Zentrums unterscheiden soll, die folgende Festlegung verwendet [168]:

$$\text{SNR} = \frac{N_0 - N_1}{\sqrt{N_0 + N_1}} . \quad (9.1)$$

Hierbei ist N_0 der Erwartungswert an detektierten Photonen bei der optischen Spinauslese, wenn das NV-Zentrum in der Spinprojektion $m_s = 0$ präpariert wurde und N_1 analog der Erwartungs- wert bei Präparation des NV-Zentrums in der Spinprojektion $m_s = \pm 1$. Da die zur Anregung des NV-Zentrums benötigten Photonen eines Lasers eine Poisson-Verteilung aufweisen, kann davon ausgegangen werden, dass auch die zu N_0 und N_1 gehörenden Zufallsvariablen Poisson-verteilt sind [77]. Die Differenz zweier Poisson-verteilter Zufallsvariablen ist Skellam-verteilt mit der zu- gehörigen Varianz $\sigma^2 = N_0 + N_1$ [295]. Der Quotient in Gleichung (9.1) ist somit als ein geeignetes Maß für das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese eines NV-Zentrums anzuse- hen.

Wie anhand von Gleichung (9.1) zu erkennen ist, wird das Signal-Rausch-Verhältnis maßgeblich durch die Differenz $N_0 - N_1$ der detektierten Photolumineszenz bei der optischen Spinauslese beeinflusst. Durch Normieren mit dem Erwartungswert N_0 der Photolumineszenz bei Präpara- tion des NV-Zentrums im $m_s = 0$ -Zustand erhält man den relativen Photolumineszenzkontrast C , der im Folgenden auch vereinfacht als Kontrast bezeichnet wird:

$$C = \frac{N_0 - N_1}{N_0} . \quad (9.2)$$

Durch Einsetzen von Gleichung (9.2) in Gleichung (9.1) kann folgender Zusammenhang zwischen Signal-Rausch-Verhältnis, Kontrast und Anzahl N_0 der detektierten Photonen bei Präparation des NV-Zentrums im $m_s = 0$ -Zustand hergeleitet werden:

$$\begin{aligned}
 \text{SNR} &= \frac{N_0 - N_1}{\sqrt{N_0 + N_1}} \\
 &= \frac{N_0 - N_1}{\sqrt{2N_0 - N_0 + N_1}} \\
 &= \sqrt{N_0} \cdot \frac{\frac{N_0 - N_1}{N_0}}{\sqrt{2 - \frac{N_0 - N_1}{N_0}}} \\
 \text{SNR} &= \sqrt{N_0} \cdot \frac{C}{\sqrt{2 - C}}. \tag{9.3}
 \end{aligned}$$

Anhand dieser Gleichung lässt sich erkennen, dass das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese sowohl von der Anzahl der detektierten Photonen nach Präparation eines NV-Zentrums im $m_s = 0$ -Zustand als auch von dem erzielten Photolumineszenzkontrast abhängig ist.

9.1.1 Methodik zur SNR-Erhöhung

Anhand von Gleichung (9.3) lassen sich unmittelbar mehrere Zugänge zur Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese ableiten, über die im Folgenden ein exemplarischer Überblick gegeben wird. Eine Möglichkeit hierzu ist die Steigerung der Sammeleffizienz der emittierten Photonen. Wird beispielsweise der Anteil des durch ein Objektiv aufgesammelten Lichts verdoppelt, so erhöht sich der SNR um einen Faktor $\sqrt{2}$, da das von der Poisson-verteilten Photonendetektion direkt abhängige Signal-Rausch-Verhältnis mit $\sqrt{N_0}$ skaliert.

Die mit einem herkömmlichen vertikal über der Diamantprobe positionierten Objektiv erzielte Sammeleffizienz wird zum einen durch die Kristallorientierung und die damit verbundene Ausrichtung der NV-Dipole relativ zur Diamantoberfläche beeinflusst. Für ein NV-Zentrum in einer Diamantprobe mit (001)-Ebene als Oberfläche können aufgrund der suboptimalen relativen Ausrichtung der NV-Dipole zur Grenzfläche Diamant/Luft weniger als 3% der ausgesendeten Photonen aufgesammelt werden (siehe Kapitel 7). Eine Probe mit (111)-Orientierung erlaubt hingegen die Ausrichtung der Emissionsdipole parallel zur Probenoberfläche, die Auskopplung von Licht wird folglich maximiert. Die Sammeleffizienz konnte für NV-Zentren durch Wahl dieser optimalen Kristallorientierung beispielsweise um 65% gegenüber einer (001)-Probe gesteigert werden, mit einer damit verbundenen Erhöhung des SNR um einen Faktor 1,3 [296]. Des Weiteren kann das Aufsammeln emittierter Photonen durch die Fabrikation einer Festkörperimmersionslinse mit Antireflexbeschichtung um ein NV-Zentrum verbessert werden. Verluste aufgrund von Totalreflexion an der Grenzfläche Diamant/Luft werden durch eine derartige Linse nahezu vollständig unterbunden. Zusammen mit einer geeigneten Kristallorientierung mit der (111)-Ebene des Diamantgitters als Probenoberfläche konnten für einzelne NV-Zentren so bereits Sättigungszählraten von über einer Million detektierter Photonen pro Sekunde gemessen und der SNR insgesamt um einen Faktor 5 im Vergleich zur Spinauslese in einer (001)-Probe und ohne zusätzliche Festkör-

perimmersionslinse gesteigert werden [53]. Alternativ konnte die Sammeleffizienz auch durch Inkorporation der NV-Zentren in Nanotürme [99,100], Nanodrähte [297] oder Wellenleiter [80,298] optimiert werden. Sogar ein ganzes Feld aus gezielt angeordneten Nanotürmen wurde theoretisch konzipiert, das als große Metalinse zur Bündelung und gezielten Abstrahlung des von einem NV-Zentrum emittierten Lichts eingesetzt werden kann [299]. Zukünftig könnte eine derartige Linse etwa die direkte Einkopplung der abgestrahlten Photonen in eine optische Faser ohne weitere Linsensystemen ermöglichen. Befindet sich das NV-Zentrum in einer wenige hundert Nanometer dicken Diamantmembran, so kann die Sammeleffizienz ferner durch das zusätzliche Anbringen eines Goldspiegels in einem geeigneten Abstand parallel zur Diamantoberfläche oder auch durch das Inkorporieren des Emitters in eine photonische Kristallstruktur gesteigert werden, wie in Kapitel 7 ausführlich dargelegt wurde.

Eine weitere Möglichkeit der SNR-Erhöhung besteht nach Gleichung (9.3) in der Erhöhung des relativen Photolumineszenzkontrastes C . Dies konnte etwa durch Steiner et al. [168] durch Ausnutzen bedingter Flip-Flop-Prozesse zwischen dem Elektronenspin eines NV-Zentrums und dem Kernspin des intrinsischen ^{15}N -Atoms demonstriert werden. Für den Kernspin eines Stickstoffatoms wurde ein Polarisationsmechanismus entwickelt, der durch eine vermiedene Kreuzung zweier kombinierter Zustände aus Elektronenspin und Kernspin bei Magnetfeldstärken um 500 G im angeregten Zustand ermöglicht wird. Dadurch konnte der Kontrast signifikant erhöht und der SNR um einen Faktor $\sqrt{3}$ gesteigert werden. Alternativ kann auch durch resonantes optisches Auslesen des Spinzustands bei Temperaturen unter 20 K eine Erhöhung des Kontrastes erzielt werden, wie etwa durch Robledo et al. [53] demonstriert wurde. Bei tiefen Temperaturen weist der angeregte Zustand des NV-Zentrums sechs Energieniveaus auf (siehe Kapitel 2). Spinerhaltende Übergänge zwischen der Spinprojektion $m_s = 0$ im Grundzustand und den Orbitalzweigen E_x und E_y des angeregten Zustands können aufgrund der für diesen Spinzustand sehr geringen Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* derart resonant getrieben werden, dass nur bei Präparation des Farbzenters im $m_s = 0$ -Zustand signifikant Photonen emittiert werden. Darüber hinaus erlauben spinselektive Übergänge in das Singulettssystem bei resonanter Anregung der Übergänge für den $m_s = \pm 1$ -Zustand eine effektive Spininitialisierung der NV-Zentren in der Spinprojektion $m_s = 0$, ein Polarisationsgrad von über 99 % kann durch optisches Pumpen erzielt werden. Bei resonanter Anregung konnte so bereits ein Kontrast von 89 % für einzelne NV-Zentren gemessen werden [53], wohingegen bei gewöhnlicher optischer Spinauslese unter nicht-resonanter Laseranregung in der Regel lediglich Photolumineszenzkontraste von bis zu 30 % [54] erzielt werden können. Dies würde einer SNR-Erhöhung um einen Faktor 2,1 entsprechen.

Neben einer Erhöhung der Sammeleffizienz oder des Photolumineszenzkontrastes kann auch eine Verkürzung der Lebensdauer des NV-Zentrums das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese steigern. Die Lebensdauer des angeregten Zustands eines Farbzenters ist direkt von der lokalen Zustandsdichte am Ort des untersuchten Quantenemitters abhängig. Wird die Zustandsdichte etwa durch Kopplung des Emitters an eine Resonatormode erhöht, so wird die spontane Emissionsrate um den Purcell-Faktor F gesteigert. Könnte die Lebensdauer durch den Purcell-Effekt beispielsweise halbiert werden, so wäre nach Gleichung (9.3) mit einer Steigerung des SNR um einen Faktor $\sqrt{2}$ zu rechnen, aber nur unter der Prämisse, dass der Kontrast bei

Überhöhung der spontanen Emissionsrate als konstant angenommen werden kann. Nach heutigem Wissensstand ist jedoch genau diese Annahme umstritten. Bogdanov et al. [78] beobachteten beispielsweise bei NV-Ensembles in Nanodiamanten eine Abnahme des Photolumineszenzkontrastes bei Verkürzung der Lebensdauer durch Kopplung an plasmonische Inseln. Eine derartige Abnahme des Kontrastes limitiert eine mögliche SNR-Erhöhung.

In den vergangenen Jahren wurden vielversprechende theoretische Studien veröffentlicht, die unter der Annahme verschiedener Mechanismen der Spinmischung sowie verschiedener Anregungsregime Vorhersagen hinsichtlich der Änderung des Photolumineszenzkontrastes oder auch des SNR bei einer Verkürzung der Lebensdauer und einer damit verbundenen Erhöhung der spontanen Emissionsrate treffen [77, 78]. Wird zunächst eine mögliche Spinmischung im Triplett-system ausgeschlossen und lediglich eine Spinmischung durch nicht-strahlende Übergänge in das Singulettssystem zugelassen, so sagen Bogdanov et al. [78] für das Anregungsregime der Sättigung voraus, dass der Kontrast eines NV-Zentrums bei einer Verkürzung der Lebensdauer unverändert bleibt und der SNR folglich gesteigert werden kann. Der unveränderte Kontrast lässt sich im Modell dadurch erklären, dass die Übergangsraten in den langlebigen Singulettzustand unabhängig von der Lebensdauer des angeregten Zustands sind. Erfolgt die optische Spinmessung hingegen bei niedrigen Anregungsraten, so wird eine Verringerung des Photolumineszenzkontrastes bei Verkürzung der Lebensdauer erwartet [78]. Dies lässt sich wiederum im Modell so erklären, dass eine Verkürzung der Lebensdauer bei niedriger, konstanter Anregungsrate zu einer geringeren Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* und somit zu einer geringeren Wahrscheinlichkeit für einen Übergang in den langlebigen Singulettzustand führt.

Wird neben den nicht-strahlenden Übergängen in das Singulettssystem zusätzlich eine nicht-strahlende Spinmischung im angeregten Zustand des Triplettsystems berücksichtigt, so wird durch Wolf et al. [77] zumindest für das Anregungsregime der Sättigung ein streng monoton wachsendes Verhalten des SNR für immer größer werdende Purcell-Faktoren vorhergesagt. Dies ist im Modell so zu erwarten, da sowohl die Übergangsraten in das Singulettssystem als auch die nicht-strahlende Spinmischungsrate im angeregten Zustand des Triplettsystems als von der Emissionsrate unabhängig angenommen werden. Der Photolumineszenzkontrast sollte somit bei Verkürzung der Lebensdauer des angeregten Zustands unverändert bleiben und der SNR aufgrund der erhöhten Emissionsrate folglich gesteigert werden. Wird alternativ in der Modellierung statt der nicht-strahlenden Spinmischung im angeregten Zustand eine strahlende Spinmischung zwischen dem angeregten Zustand und dem Grundzustand des Triplettsystems angenommen, so nimmt der theoretisch vorhergesagte SNR bei einem Purcell-Faktor von etwa 2 sein Maximum an und fällt für größer werdende Purcell-Faktoren streng monoton ab [77]. Dies ist im Modell so zu erwarten, da die angenommene strahlende Spinmischungsrate mit der Emissionsrate skaliert und somit bei Verkürzung der Lebensdauer mit einer Abnahme des Photolumineszenzkontrastes zu rechnen ist, der wiederum die SNR-Erhöhung limitiert.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Auswirkung der Ankopplung von NV-Zentren an die Mode eines photonischen Kristallresonators und der damit verbundenen Verkürzung der Lebensdauer auf das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese untersucht. Neben der Verkürzung der Lebensdauer selbst, die im Experiment durch eine TCSPC-Messung zugänglich ist,

beeinflusst hierbei nach Gleichung (9.3) auch die Änderung der Sammeleffizienz den SNR. Deren wellenlängenabhängiges Verhalten wurde für die hergestellten Resonatoren bereits in Kapitel 7 ausführlich beschrieben. Im Folgenden ist jedoch noch zu klären, wie sich eine Verkürzung der Lebensdauer auf den Kontrast auswirkt und ob somit insgesamt durch das Abstimmen einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren eine Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis erzielt werden kann. Zur Beantwortung dieser Fragen ist insbesondere die Entwicklung einer Methodik zur Kontrastbestimmung erforderlich, die den Vergleich des erzielten Photolumineszenzkontrastes vor und nach Abstimmen einer Mode auf die NV-ZPL zuverlässig ermöglicht.

9.1.2 Methodik zur zuverlässigen Kontrastbestimmung

In diesem Abschnitt werden zunächst gängige Methoden zur Bestimmung des erzielten Photolumineszenzkontrastes bei der optischen Spinauslese eines NV-Zentrums erläutert. Auf der Basis der eingeführten Methoden wird anschließend das in dieser Arbeit eingesetzte Verfahren dargelegt, das die Vorteile der einzelnen Techniken kombiniert und somit die zuverlässige und reproduzierbare Bestimmung des Photolumineszenzkontrastes ermöglicht.

Kontrastbestimmung anhand einer CW ODMR-Messung

Eine Möglichkeit der Kontrastbestimmung ist die Durchführung einer ODMR-Messung unter kontinuierlicher Laser- und Mikrowelleneinstrahlung. Die Nullfeldaufspaltung der Grundzustandsniveaus eines NV-Zentrums liegt mit $D_g = 2,88$ GHz im Frequenzbereich gängiger Mikrowellenquellen. Da darüber hinaus magnetische Dipolübergänge mit $\Delta m_s = \pm 1$ erlaubt sind, kann der Übergang zwischen den beiden Grundzustandsniveaus mit einem geeigneten Mikrowellenfeld getrieben werden. Wird ein NV-Zentrum durch einen nicht-resonanten Laser angeregt und zusätzlich mithilfe einer Mikrowellenantenne ein oszillierendes Magnetfeld am Ort des Emitters erzeugt, so ist die Anzahl an pro Zeit detektierten Photonen bei nicht-resonanten Mikrowellenfrequenzen zunächst maximal. Wird die Mikrowellenfrequenz im Anschluss derart variiert, dass das Mikrowellenfeld auf den Grundzustandsübergang zwischen $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ abgestimmt ist, so findet ein Populationstransfer zwischen den Energieniveaus im Grundzustand statt. Da das NV-Zentrum im $m_s = \pm 1$ -Zustand aufgrund der höheren Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* im Mittel weniger Photonen emittiert als im $m_s = 0$ -Zustand, nimmt die Intensität der registrierten Photolumineszenz in Resonanz ab, im ODMR-Spektrum ist ein lorentzförmiger, um die Resonanzfrequenz zentrierter Einbruch zu beobachten.

In Abbildung 9.1a ist ein für NV-Zentren typisches ODMR-Spektrum dargestellt. Das untersuchte NV-Ensemble wurde ebenfalls mithilfe der AFM-Einheit in eine dünne Diamantmembran hier jedoch außerhalb einer photonischen Kristallstruktur implantiert. Da während der Messung ein externes Magnetfeld der konstanten Flussdichte $B = 2$ mT angelegt war, sind die lorentzförmigen Einbrüche im ODMR-Spektrum, die den beiden Spinprojektionen $m_s = -1$ und $m_s = +1$ zugeordnet werden können, aufgrund der resultierenden Zeeman-Aufspaltung des Grundzustands um jeweils 38 MHz verschoben. Dies erlaubt durch Wahl einer geeigneten Mikrowellenfrequenz

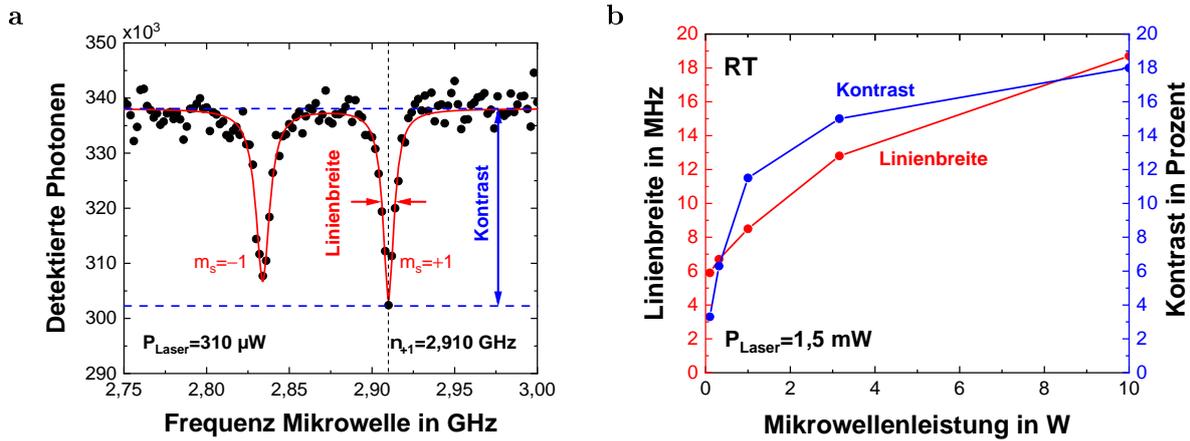


Abbildung 9.1: ODMR-Messungen an einem NV-Ensemble bei Raumtemperatur unter kontinuierlicher Laseranregung bei 532 nm sowie kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung. (a) Anzahl der detektierten Photonen in Abhängigkeit der Mikrowellenfrequenz. Aufgrund des angelegten externen Magnetfelds der konstanten Flussdichte 2 mT weisen die zu den beiden Spinprojektionen $m_s = -1$ bzw. $m_s = +1$ gehörenden lorentzförmigen Einbrüche unterschiedliche Resonanzfrequenzen auf. (b) Kontrast (blau) und Linienbreite (rot) in Abhängigkeit der Mikrowellenleistung für die Spinprojektion $m_s = +1$.

die gezielte Populierung etwa des $m_s = +1$ -Zustands, auf den sich im weiteren Verlauf des Kapitels beschränkt wird. Die Differenz der Photolumineszenzintensität kann anhand eines solchen ODMR-Spektrums unmittelbar abgelesen werden, exemplarisch ergibt sich hier ein absoluter Kontrast von $36\,000$ Photonen sowie ein relativer Kontrast von $10,7\%$.

Hinsichtlich der Bestimmung des Kontrastes anhand einer durchgeführten ODMR-Messung sind zwei Sachverhalte zu beachten. Zum einen bewirkt das Mikrowellenfeld sowohl eine Spinrotation von $m_s = 0$ in $m_s = +1$ als auch gleichzeitig eine Spinrotation von $m_s = +1$ zurück in $m_s = 0$. Die Populationen der Spinzustände oszillieren, nach kurzer Zeit stellt sich ein Besetzungsgleichgewicht ein. Es ist somit selbst in einem idealen System unmöglich, die gesamte Population mittels kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung vom $m_s = 0$ in den $m_s = +1$ -Zustand zu überführen. Des Weiteren sind sowohl der Kontrast als auch die Linienbreite des lorentzförmigen Einbruchs im ODMR-Spektrum von der Laserleistung sowie der Stärke des Mikrowellenfeldes am Ort des Emitters abhängig. In Abbildung 9.1b sind die beiden Größen zunächst in Abhängigkeit der eingestellten Mikrowellenleistung für ein exemplarisch betrachtetes NV-Ensemble bei gleichbleibender Laserleistung aufgetragen. Da die relative Positionierung der Mikrowellenantenne zur Probe während der Messungen nicht verändert wurde, lag bei einer größeren Mikrowellenleistung auch stets ein stärkeres Mikrowellenfeld am Ort der Emitter vor. Wie zu erwarten nehmen bei einem stärkeren lokalen Feld sowohl der Kontrast im ODMR-Spektrum als auch die Halbwertsbreite des lorentzförmigen Einbruchs zu. Wird umgekehrt bei gleichbleibendem Mikrowellenfeld die Laserleistung vergrößert, so ist erneut eine Vergrößerung der Linienbreite zu beobachten, der Kontrast nimmt jedoch mit zunehmender Laserleistung ab (Abbildung 9.2a und 9.2b).

Um einen tieferen Einblick in den vorliegenden Zusammenhang zwischen Kontrast bzw. Linien-

breite im ODMR-Spektrum einerseits und Laserleistung bzw. Stärke des Mikrowellenfelds am Ort der NV-Zentren andererseits zu erhalten, wird im Folgenden ein von Dréau et al. [54] entwickeltes theoretisches Modell eingeführt. Das NV-Zentrum wird vereinfacht als geschlossenes Zwei-Niveau-System mit den beiden Zustände $|0\rangle$ und $|1\rangle$ modelliert, die den Spinprojektionen $m_s = 0$ und $m_s = +1$ im 3A -Grundzustand zugeordnet sind. Das Zusammenwirken dieses Systems mit einem resonanten Magnetfeld, das mit einer Mikrowellenfrequenz ω_{MW} oszilliert, kann durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben werden:

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 |1\rangle \langle 1| + \hbar\Omega_R \cos(\omega_{\text{MW}}t) (|0\rangle \langle 1| + |1\rangle \langle 0|) \quad (9.4)$$

mit der Frequenz ω_0 des Spinübergangs und der Rabi-Frequenz Ω_R .

Mithilfe eines Dichteoperators $\hat{\sigma}$ kann die zeitliche Entwicklung des Zwei-Niveau-Systems in der nachfolgenden Liouville-Gleichung wie folgt beschrieben werden:

$$\frac{d\hat{\sigma}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}, \hat{\sigma}] + \left(\frac{d\hat{\sigma}}{dt} \right)_{\text{Relaxation}} . \quad (9.5)$$

Obwohl im Modell weder Populationen im angeregten 3E -Zustand noch im metastabilen 1E -Singulettzustand betrachtet werden, können die Vorgänge bei optischer Anregung durch Relaxationsprozesse für Populationen und Kohärenzen der Grundzustandsniveaus beschrieben werden. Der Einfluss des für die Spininitialisierung verantwortlichen metastabilen Zustands des Singulettsystems wird als Relaxation der Population σ_{11} mit einer Polarisationsrate Γ_p beschrieben. Je größer die Laserleistung P_{Laser} ist, desto größer ist die Anzahl an optischen Zyklen pro Zeit und desto größer ist auch diese Polarisationsrate. Mit der Sättigungsleistung P_{Sat} , der relativen Laserleistung $s = P_{\text{Laser}}/P_{\text{Sat}}$ sowie der Polarisationsrate Γ_p^∞ in Sättigung gilt:

$$\Gamma_p = \Gamma_p^\infty \cdot \frac{s}{1+s} . \quad (9.6)$$

Die Polarisationsrate in Sättigung ist durch die Lebensdauer des Singulettzustands festgelegt, die bei Raumtemperatur etwa 200 ns beträgt [53]. Folglich gilt $\Gamma_p^\infty = 5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$.

Die optische Anregung führt darüber hinaus zu einer Relaxation der Kohärenzen σ_{ij} des Elektronenspins. Für die zugehörige Relaxationsrate der Kohärenzen aufgrund der kontinuierlichen optischen Laseranregung gilt analog:

$$\Gamma_c = \Gamma_c^\infty \cdot \frac{s}{1+s} \quad (9.7)$$

wobei Γ_c^∞ hierbei die Rate der optischen Umläufe in Sättigung darstellt, die durch die Lebensdauer des angeregten Zustands des betrachteten Quantenemitters festgelegt ist. Für das in Abbildung 9.2 exemplarisch betrachtete NV-Ensemble wurde beispielsweise eine Lebensdauer von 11 ns gemessen, folglich ergibt sich eine zugehörige Rate in Sättigung von $\Gamma_c^\infty = 9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$.

An dieser Stelle ist anzumerken, dass das Zwei-Niveau-System zusätzlichen Relaxationen durch die Wechselwirkung mit der unmittelbaren Diamantumgebung ausgesetzt ist. Aufgrund der Spin-Gitter-Wechselwirkung erfolgt eine intrinsische Relaxation der Populationen σ_{ii} mit einer durch

die Kohärenzzeit T_1 festgelegten typischen Rate für NV-Zentren von $10^3 - 10^5 \text{ s}^{-1}$, die Kohärenzen σ_{ij} zerfallen zusätzlich mit einer inhomogenen Dephasierungsrate in der Größenordnung von 10^5 s^{-1} [60, 300]. Werden die NV-Zentren wie in den durchgeführten ODMR-Messungen erfolgt mit einer hinreichend großen Laserleistung angeregt, so können diese intrinsischen Relaxationsprozesse vernachlässigt werden, da beide Raten deutlich geringer sind als Γ_p^∞ und Γ_c^∞ .

Die Photolumineszenzrate in Abhängigkeit der Rabi-Frequenz Ω_R , der Mikrowellenfrequenz ω_{MW} sowie der relativen Laserleistung s kann mithilfe der Lösungen der eingeführten Liouville-Gleichung (9.5) im Gleichgewichtszustand σ_{00}^{GGZ} und σ_{11}^{GGZ} wie folgt geschrieben werden [54]:

$$R(\Omega_R, \omega_{\text{MW}}, s) = [\alpha \sigma_{00}^{\text{GGZ}} + \beta \sigma_{11}^{\text{GGZ}}] \cdot \frac{s}{1+s}. \quad (9.8)$$

Die Parameter α und β berücksichtigen hierbei die unterschiedlichen Photolumineszenzintensitäten zwischen den beiden Spinprojektionen $m_s = 0$ bzw. $m_s = +1$. Wird der erzielte Kontrast wie gewohnt als relative Differenz der Photolumineszenzintensitäten festgelegt, so gilt folglich:

$$C = \frac{R(0,0,s) - R(\Omega_R, \omega_{\text{MW}}, s)}{R(0,0,s)}. \quad (9.9)$$

Zusammen mit Gleichung (9.8) sowie den zugehörigen Lösungen der Liouville-Gleichung (9.5) kann schließlich der folgende Ausdruck für den in einer ODMR-Messung erzielten Photolumineszenzkontrast ermittelt werden [54]:

$$C = k \cdot \frac{\Omega_R^2}{\Omega_R^2 + \Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty \left(\frac{s}{1+s}\right)^2} \quad (9.10)$$

mit dem Normierungsfaktor $k = (\alpha - \beta)/2\alpha$. An dieser Stelle ist anzumerken, dass etwa Shao et al. [301] zu einem ähnlichen Ausdruck für den in einer CW ODMR-Messung ermittelten Photolumineszenzkontrast gelangen. Deren Term berücksichtigt jedoch zusätzlich noch die Relaxation der Populationen durch die Spin-Gitter-Wechselwirkung, die für die hier verwendeten Laserleistungen wie bereits angesprochen wurde vernachlässigt werden kann. Für diesen Grenzfall können die beiden Formeln in Einklang gebracht werden.

Darüber hinaus kann für die Linienbreite des lorentzförmigen Einbruchs im ODMR-Spektrum der nachfolgende Zusammenhang hergeleitet werden [54]:

$$\Delta\nu = \frac{\Gamma_c^\infty}{2\pi} \sqrt{\left(\frac{s}{1+s}\right)^2 + \frac{\Omega_R^2}{\Gamma_p^\infty \Gamma_c^\infty}}. \quad (9.11)$$

Sowohl der theoretisch vorhergesagte Kontrast als auch die Halbwertsbreite des lorentzförmigen Einbruchs im ODMR-Spektrum nehmen folglich wie auch bereits im Experiment beobachtet werden konnte mit zunehmender Rabi-Frequenz und somit Mikrowellenleistung zu. Des Weiteren sagt das theoretische Modell in Einklang mit dem Experiment voraus, dass der Kontrast mit zunehmender Laserleistung abnimmt, während die Linienbreite zunimmt. Qualitativ stimmen theoretische Vorhersagen und experimentelle Ergebnisse somit vollkommen überein.

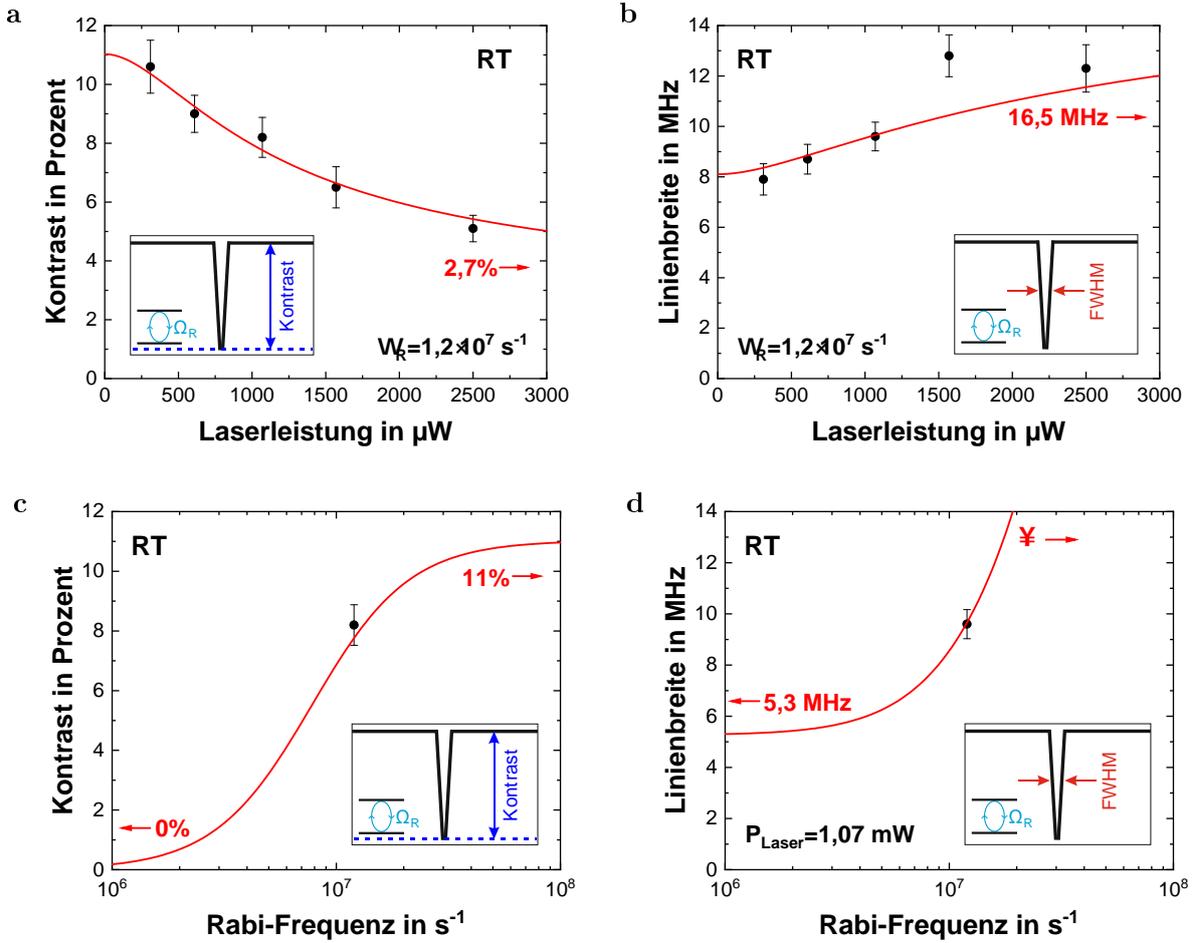


Abbildung 9.2: ODMR-Messungen an einem weiteren NV-Ensemble bei Raumtemperatur unter kontinuierlicher Laseranregung bei 532 nm sowie kontinuierlicher Mikrowelleneinstrahlung. Die Laserleistung wurde variiert und Kontrast sowie Linienbreite der lorentzförmigen Einbrüche für die Spinprojektion $m_s = +1$ aus den ODMR-Spektren deduziert (schwarze Punkte). (a) Der Graph der Funktionsgleichung (9.10) wurde für $\Gamma_p^\infty = 5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$, $\Gamma_c^\infty = 9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ und $P_{\text{Sat}} = 1,85 \text{ mW}$ an die Messwerte angepasst (rote Kurve). Mithilfe der dadurch ermittelten Parameter sowie den Funktionsgleichungen (9.10) sowie (9.11) wurden anschließend die theoretisch vorhergesagten Verläufe in (b-d) bestimmt (rote Kurven).

Um die experimentell bestimmten Werte auch quantitativ mit den durch das Modell vorhergesagten Werten vergleichen zu können, wurden zunächst die Messpunkte in Abbildung 9.2a durch die Kontrastfunktion in Gleichung (9.10) angepasst unter Verwendung der zuvor bestimmten Raten $\Gamma_p^\infty = 5 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ und $\Gamma_c^\infty = 9 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ sowie der durch eine Sättigungsmessung bestimmten Sättigungsleistung $P_{\text{Sat}} = 1,85 \text{ mW}$. Die beste Anpassung wurde für einen Normierungsfaktor von $k = 0,11$ sowie eine Rabi-Frequenz von $\Omega_R = 1,2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ erzielt. Diese Rabi-Frequenz entspricht einer Pi-Zeit von 270 ns. Im Anschluss daran wurde mithilfe der ermittelten Parameter der theoretisch vorhergesagte Kontrast in Abhängigkeit der Rabi-Frequenz sowie die theoretisch zu erwartenden Linienbreiten in Abhängigkeit von Rabi-Frequenz und Laserleistung mithilfe der Gleichungen (9.10) und (9.11) berechnet und die zugehörigen Verläufe in den Abbildungen 9.2b-c

ergänzt. Die aus den ODMR-Spektren deduzierten Messwerte stimmen mit den theoretisch vorhergesagten Werten gut überein. Die angegebenen Fehlerbalken resultieren aus der Ungenauigkeit in der Deduktion der Linienbreiten und relativen Kontraste aus den ODMR-Spektren. In diesem Zusammenhang ist noch anzumerken, dass das theoretische Modell für ein einzelnes NV-Zentrum entwickelt, in den Messungen jedoch ein NV-Ensemble untersucht wurde. Somit sind sämtliche bestimmten Modellparameter Mittelwerte über alle angeregten NV-Zentren im Laserfokus.

Kontrastbestimmung anhand einer Rabi-Messung

Eine typische Rabi-Sequenz lässt sich in drei Teile untergliedern. Wie in Abbildung 9.3a schematisch dargestellt ist, besteht der erste Teil der Sequenz aus einem $2\ \mu\text{s}$ andauernden nicht-resonanten Laserpuls bei $532\ \text{nm}$. Unter einer derartigen kontinuierlichen Laseranregung werden NV-Zentren bereits nach wenigen optischen Zyklen in der Spinprojektion $m_s = 0$ initialisiert. Im Anschluss daran erfolgt ein Mikrowellenpuls variabler Länge, der auf die Resonanzfrequenz des Übergangs zwischen den Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ und $m_s = +1$ abgestimmt ist. Die in einem dritten Teil der Sequenz während des Laserpulses zur Spinauslese emittierten Photonen werden schließlich in einem $250\ \text{ns}$ breiten Zeitfenster (*gate*) detektiert. In Abbildung 9.3b ist eine exemplarische Fluoreszenzkurve einer Rabi-Sequenz dargestellt. Die normierte Fluoreszenz oszilliert periodisch in Abhängigkeit der Dauer des Mikrowellenpulses, bis sich ab einer bestimmten, von der Kohärenzzeit der angeregten NV-Zentren abhängigen Pulsdauer ein Gleichgewichtszustand der Besetzungen einstellt.

Anhand einer Rabi-Kurve kann der Pi-Kontrast, der den bestmöglich erzielbaren relativen Photolumineszenzkontrast darstellt, unmittelbar ermittelt werden. Bei der Kontrastbestimmung hat zum einen die zeitliche Positionierung des Auslesefensters einen entscheidenden Einfluss auf den gemessenen Kontrast. In Abbildung 9.3c ist eine zeitaufgelöste Photolumineszenzkurve dargestellt. Wird beispielsweise wie in der durchgeführten Rabi-Sequenz *RabiGate1* gewählt, so ist der aus der Rabi-Kurve deduzierte Photolumineszenzkontrast deutlich größer als bei Wahl des gleich breiten, aber schlechter positionierten Auslesefensters *RabiGate2*. Des Weiteren sollte auch die Wahl der Breite des Auslesefensters beachtet werden. Je breiter das Zeitfenster ist, desto weniger Messzyklen sind zur Detektion einer bestimmten Photonenzahl erforderlich. Andererseits mindert ein zu breites Auslesefenster den gemessenen Kontrast. Die im Rahmen dieser Arbeit gewählte Breite von $250\ \text{ns}$ stellt einen Kompromiss zwischen beiden Anforderungen dar. Der anhand einer Rabi-Kurve ermittelte Photolumineszenzkontrast ist, zumindest bei einer Pi-Zeit in der Größenordnung der Spin-Relaxationszeit, darüber hinaus von der Stärke des Mikrowellenfeldes am Ort des Emitters abhängig, da diese Größe die Populierung des $m_s = +1$ -Zustands während des Mikrowellenpulses limitiert. Diese Beobachtung konnte ebenso bereits bei den durchgeführten CW ODMR-Messungen gemacht werden.

Kombiniertes Verfahren zur zuverlässigen Kontrastbestimmung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein kombiniertes Verfahren bestehend aus drei Messungen eingesetzt, die in geeigneter Abfolge die zuverlässige und reproduzierbare Bestimmung des zeitaufge-

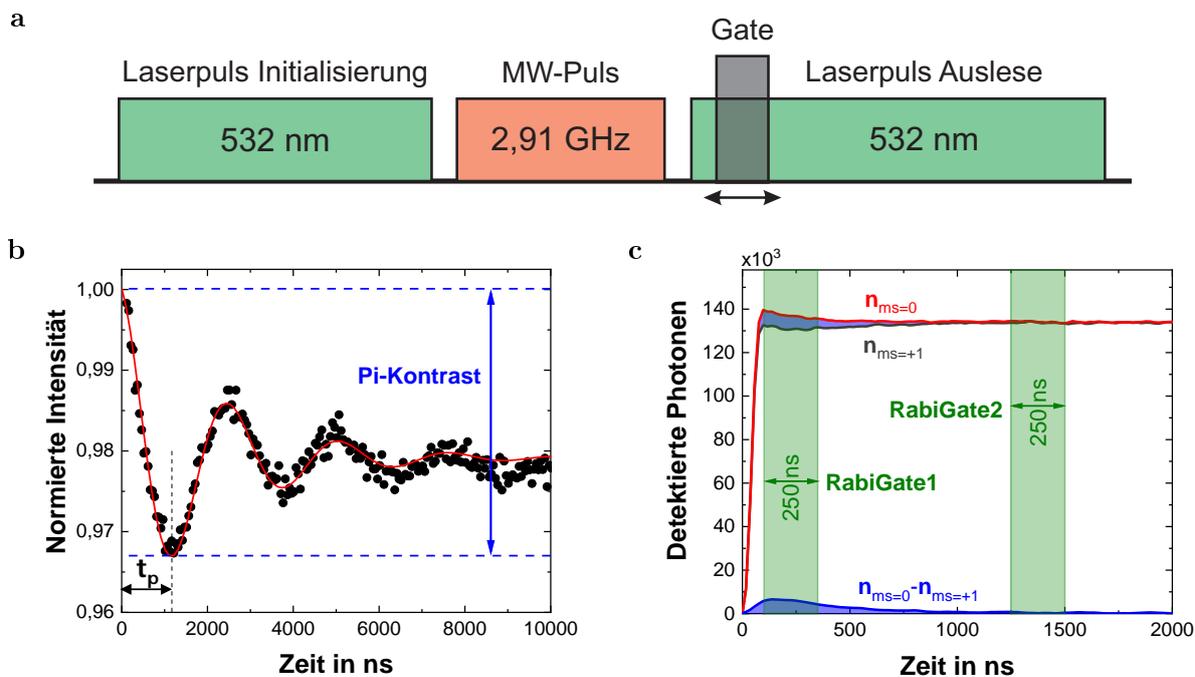


Abbildung 9.3: Rabi-Sequenzen und zeitaufgelöste Photolumineszenzkurven für ein NV-Ensemble bei Flüssigheliumtemperaturen. (a) Bei der verwendeten Pulssequenz werden die NV-Zentren durch einen $2\ \mu\text{s}$ andauernden Laserpuls bei $532\ \text{nm}$ im $m_s = 0$ -Zustand initialisiert, anschließend die Besetzung des Grundzustands durch einen abgestimmten Mikrowellenpuls manipuliert, gefolgt von einem Laserpuls zur Spinauslese bei ebenfalls $532\ \text{nm}$. Die Photolumineszenz wird während eines zeitlich verschiebbaren Zeitfensters (*gate*) detektiert. (b) Rabi-Oszillationen. Die Pulslänge des Mikrowellenpulses wurde von $0\ \mu\text{s}$ bis $10\ \mu\text{s}$ variiert und die Anzahl der detektierten Photonen im $250\ \text{ns}$ breiten Zeitfenster *Rabigate1* in mehreren Durchläufen gezählt und aufaddiert. Die gemessene Fluoreszenz wurde jeweils mit der Referenzfluoreszenz von Sequenzen ohne Manipulation des Spinzustands nach Spininitialisierung normiert. Die Pi-Zeit beträgt hier $\tau_\pi = 1300\ \text{ns}$. (c) Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessung bei Präparation der NV-Zentren in der Spinprojektion $m_s = 0$ (rote Kurve) sowie $m_s = +1$ (schwarze Kurve) und resultierender Kontrast (blaue Kurve). Als Mikrowellenpuls wurde ein Pi-Puls gewählt, die Breite des Auslesefensters betrug hier $50\ \text{ns}$.

lösten Photolumineszenzkontrastes bei der optischen Spinauslese von NV-Zentren ermöglichen. In einem ersten Schritt wird zunächst eine ODMR-Messung unter kontinuierlicher Laseranregung und Mikrowelleneinstrahlung wie zuvor beschrieben durchgeführt. Die Detektion der Fluoreszenz bei Variation der Mikrowellenfrequenz liefert die vom untersuchten NV-Ensemble abhängige Resonanzfrequenz des Übergangs zwischen den Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ und $m_s = +1$ als Zentralwellenlänge des zugehörigen lorentzförmigen Einbruchs im ODMR-Spektrum.

Im Anschluss daran erfolgt eine Rabi-Messung, bei der die eingestrahlten Mikrowellenpulse die zuvor bestimmte Resonanzfrequenz aufweisen. Anhand der beobachteten Rabi-Oszillationen kann die Pi-Zeit und somit auch die Rabi-Frequenz bestimmt werden (siehe Kapitel 2). Diese Größen hängen insbesondere von der Stärke des Mikrowellenfeldes am Ort der angeregten Dipolemitter

ab. Durch Verändern der Positionierung der Mikrowellenantenne oder auch der eingestrahlten Mikrowellenleistung kann die lokale Feldstärke am Ort der Emitter verändert und somit Messungen zu verschiedenen Zeitpunkten oder auch an verschiedenen NV-Zentren mit übereinstimmender Pi-Zeit und somit übereinstimmender Rabi-Frequenz durchgeführt werden.

In einem dritten Schritt werden die beiden spinabhängigen zeitaufgelösten Fluoreszenzkurven mit einer gegenüber der erfolgten Rabi-Messung unveränderten Positionierung der Mikrowellenantenne und bei gleichbleibender Mikrowellenleistung aufgenommen. Dazu wird die in Abbildung 9.3a dargestellte Pulssequenz implementiert. Die Dauer des Mikrowellenpulses wird auf die zuvor aus der Rabi-Kurve deduzierte Pi-Zeit abgestimmt, als Mikrowellenfrequenz wird weiterhin die aus dem ODMR-Spektrum deduzierte Resonanzfrequenz beibehalten. Nach erfolgter $2\ \mu\text{s}$ andauernder Spininitialisierung durch einen nicht-resonanten Laserpuls bei $532\ \text{nm}$ wird der $m_s = +1$ -Zustand durch den abgestimmten Pi-Puls gezielt populiert. Während des anschließenden Laserpulses bei $532\ \text{nm}$ wird ein Auslesefenster der Breite $50\ \text{ns}$ zeitlich verschoben und somit die Fluoreszenz zu verschiedenen Zeitpunkten nach Einschalten des Lasers detektiert. Um den zeitaufgelösten Photolumineszenzkontrast bestimmen zu können, wird zusätzlich für jedes Zeitfenster eine Referenzmessung ohne manipulierenden Mikrowellenpuls durchgeführt.

9.2 Erhöhung des SNR durch Abstimmen einer Resonatormode auf die NV-Nullphononenlinie

In diesem Abschnitt wird die Änderung des Signal-Rausch-Verhältnis bei Abstimmen einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie eines schwachen Ensembles von NV-Zentren untersucht. Der hierzu betrachtete M0-Resonator in einer photonischen Kristallstruktur in Diamant weist eine Fundamentalmode mit einem Gütefaktor von $Q = 2060$ auf. In das Feldmaximum dieser Mode wurden Stickstoffionen mithilfe der eingeführten AFM-Einheit implantiert, durch umfangreiche Nachbehandlungsmaßnahmen die Erzeugung von NV-Zentren im angestrebten negativen Ladungszustand ermöglicht (siehe Kapitel 8).

Das Signal-Rausch-Verhältnis ist nach Gleichung (9.3) zum einen von der Anzahl N_0 der bei der optischen Spinauslese detektierten Photonen nach Präparation des NV-Zentrums im $m_s = 0$ -Zustand abhängig. Diese Anzahl wird wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert wurde durch die Lebensdauer der NV-Zentren sowie die Sammeleffizienz beeinflusst. Die im betrachteten M0-Resonator inkorporierten NV-Zentren weisen bei einer spektralen Modenposition von $634\ \text{nm}$ eine Lebensdauer von $9,0\ \text{ns}$ auf, die durch das Abstimmen der Mode auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren auf $8,0\ \text{ns}$ verkürzt wird (siehe Kapitel 8). Das wellenlängenabhängige Verhalten der Sammeleffizienz wurde bereits in Kapitel 7 ausführlich diskutiert und ist somit ebenfalls bekannt. Neben der Anzahl an detektierten Photonen ist das Signal-Rausch-Verhältnis nach Gleichung (9.3) darüber hinaus vom Photolumineszenzkontrast abhängig. Die Änderung des Kontrastes bei Verkürzung der Lebensdauer durch das Abstimmen der Fundamentalmode auf die NV-ZPL ist jedoch für das vorliegende System noch unbekannt. Um die Gesamtänderung des SNR abschätzen zu können, muss folglich noch der Photolumineszenzkontrast für die beiden betrachteten

spektralen Modenpositionen 634 nm sowie 637,4 nm ermittelt und verglichen werden.

9.2.1 Kontrast eines an eine Resonatormode gekoppelten NV-Ensembles

Um den Photolumineszenzkontrast vor und nach Abstimmen der Fundamentalmode des betrachteten M0-Resonators auf die NV-ZPL zuverlässig vergleichen zu können, wurde zur Kontrastbestimmung die in Abschnitt 9.1.2 dargelegte Methodik eingesetzt. Hierzu wurde in einem ersten Schritt bei einer spektralen Position der $e1$ -Mode von 634 nm eine ODMR-Messung bei kontinuierlicher Laseranregung und Mikrowelleneinstrahlung durchgeführt. In diesem Kapitel wird sich auf die gezielte Populierung des $m_s = +1$ -Zustands beschränkt, der zugehörige Mikrowellenübergang weist für das betrachtete NV-Ensemble im ODMR-Spektrum eine mittlere Resonanzfrequenz von $\nu_{+1} = 2,917$ GHz auf (Abbildung 9.4f).

Im Anschluss daran wurde eine Rabi-Kurve aufgenommen (Abbildung 9.4a). Die Mikrowellenfrequenz wurde auf die zuvor bestimmte Resonanzfrequenz für den Grundzustandsübergang vom $m_s = 0$ in den $m_s = +1$ -Zustand abgestimmt und die Dauer der Mikrowellenpulse variiert. Als Laserleistung wurde wie auch in allen anderen Messungen dieses Abschnitts die jeweilige Sättigungsleistung gewählt. Die anhand der beobachteten Rabi-Oszillationen deduzierte Pi-Zeit vor Abstimmen der Mode beträgt 550 ns. Im Rahmen dieser Arbeit konnten zwar bereits Pi-Zeiten von bis zu 270 ns realisiert werden, ein zu dichtes Heranfahren der Mikrowellenantenne an den Resonator birgt jedoch das Risiko der unerwünschten Kollision. Die erzielte Pi-Zeit stellt somit einen Kompromiss zwischen einer möglichst effektiven Mikrowellenmanipulation der NV-Zentren im Resonator und einer sicheren Positionierbarkeit der Nahfeldantenne dar.

Die anschließend aufgenommenen zeitaufgelösten Photolumineszenzkurven sind in Abbildung 9.4c dargestellt. Als Mikrowellenfrequenz wurde hierzu die ermittelte Resonanzfrequenz von $\nu_{+1} = 2,917$ GHz beibehalten und als manipulierende Mikrowellenpulse Pi-Pulse mit einer Dauer von 550 ns gewählt, die eine möglichst effektive Populierung des $m_s = +1$ -Zustands gewährleisten. Wie zu erwarten steigen die Fluoreszenzkurven sowohl für eine Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand als auch im $m_s = +1$ -Zustand nach dem Einschalten des nicht-resonanten, grünen Lasers zunächst steil an, wobei die Zählrate im $m_s = 0$ -Zustand (*bright state*) generell höhere Werte aufweist als im $m_s = +1$ -Zustand (*dark state*). Beide Kurven nähern sich bei fortschreitender Dauer des Auslesepulses einem gemeinsamen Wert an, die Besetzungen der beiden Grundzustandsniveaus konvergieren gegen den Gleichgewichtszustand (*steady state*).

Im Anschluss an diese Messreihe erfolgte die Abstimmung der Fundamentalmode auf die Nullphononenlinie der implantierten NV-Zentren bei 637,4 nm (siehe Kapitel 8). Da die Probe für den durchgeführten Abstimmungsprozess ausgebaut werden musste, war nach erneutem Proben-einbau eine Neupositionierung der Mikrowellenantenne erforderlich. Hierzu wurde die Antenne schrittweise verfahren, Rabi-Kurven aufgenommen und die Pi-Zeit jeweils deduziert. Bei der final gewählten Antennenposition konnte eine Pi-Zeit von 570 ns erzielt werden (Abbildung 9.4b), in guter Übereinstimmung mit dem zuvor bei einer spektralen Position der $e1$ -Mode von 634 nm ermittelten Wert. Somit konnte sichergestellt werden, dass das Mikrowellenfeld am Ort des betrachteten NV-Ensembles die gleiche Stärke wie in der Messreihe zuvor aufwies. Die anschließend

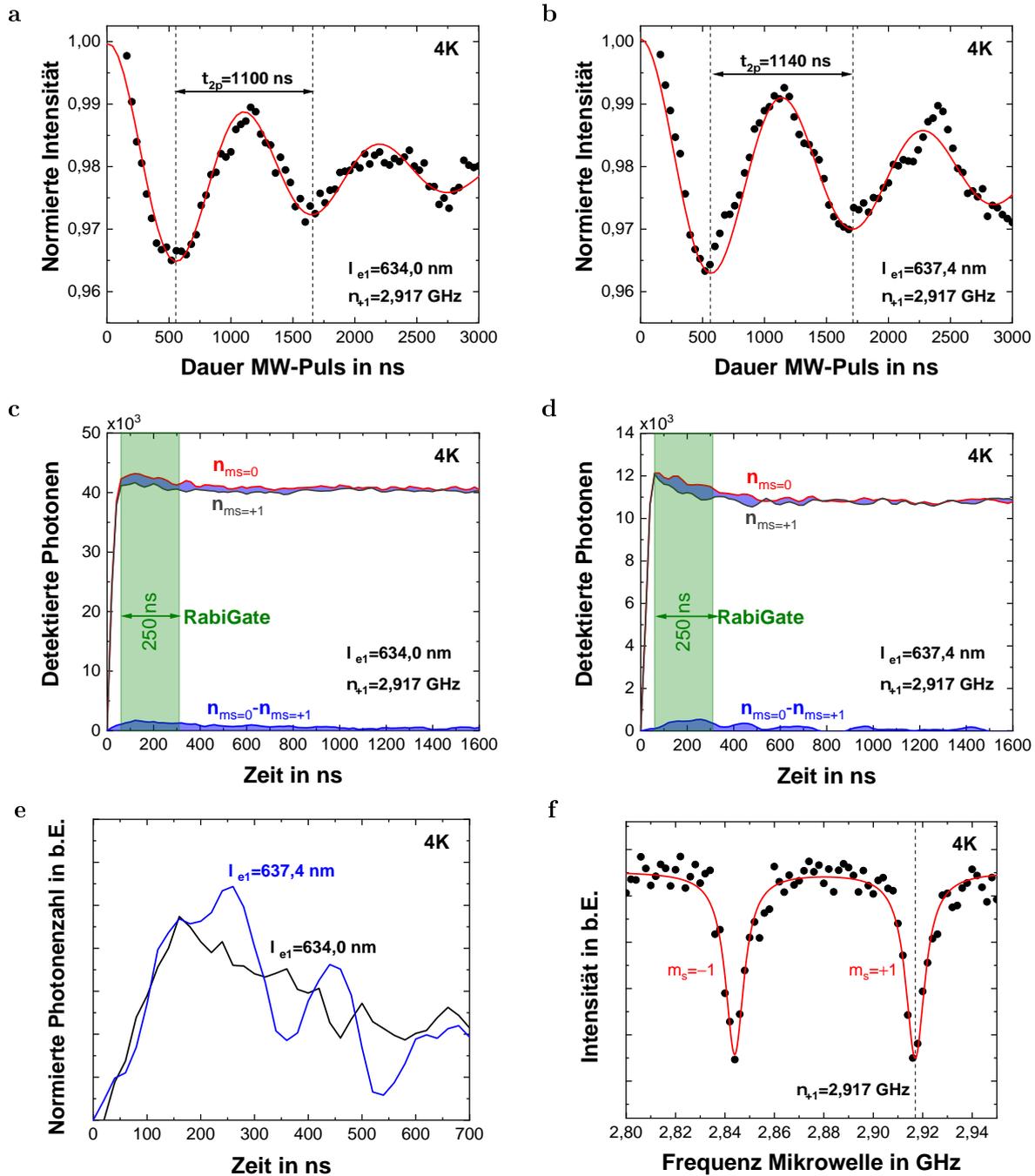


Abbildung 9.4: Kontrastbestimmung vor und nach Abstimmen der Fundamentalmode auf die Nullphononenlinie des schwachen NV-Ensembles im betrachteten M0-Resonator bei Flüssigheliumtemperaturen. (a und b) Rabi-Kurven. Die Messpunkte wurden jeweils durch exponentiell gedämpfte Sinuskurven (rot) angepasst. (c und d) Zeitaufgelöste Photolumineszenzkurven bei Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand (rot) und $m_s = +1$ -Zustand (schwarz) sowie Differenz der Kurven (blau). Die Differenz der Kurven wurde in (e) jeweils auf die Photonenzahl im Gleichgewichtszustand normiert. (f) CW ODMR-Spektrum bei einem zusätzlich angelegten Magnetfeld der Stärke 2 mT. Die Anregung erfolgte mit einem nicht-resonanten Laser bei 532 nm mit der jeweiligen Sättigungsleistung, die Detektion auf dem NV-Seitenband in einem Filterfenster von 650 nm bis 750 nm.

bei einer unveränderten Mikrowellenfrequenz von $\nu_{+1} = 2,917$ GHz und einer Pi-Zeit von 570 ns aufgenommenen zeitaufgelösten Photolumineszenzkurven sind in Abbildung 9.4d dargestellt. Die Fluoreszenz steigt nach Einschalten des Lasers wie gewohnt steil an und fällt nach Erreichen des Maximums bei zunehmender Dauer der Lasereinstrahlung auf den für beide Spinprojektionen übereinstimmenden Gleichgewichtswert ab. Um die aufgenommenen zeitaufgelösten Kontrastkurven trotz unterschiedlicher Anzahlen an Repetitionen hinsichtlich des erzielten (relativen) Photolumineszenzkontrastes C analysieren zu können, wurde die detektierte Fluoreszenz und somit auch die resultierenden Kontrastkurven im Anschluss jeweils auf die Photonenzahl im Gleichgewichtszustand normiert. Die derart normierten Kurven sind in Abbildung 9.4e für eine Zeitspanne von etwa zwei Lebensdauern des langlebigen 1E -Singulettzustands aufgetragen. Die über den in der Abbildung dargestellten Zeitbereich integrierten Photonenzahlen für die beiden betrachteten Modenpositionen $\lambda_{e1} = 634$ nm mit einer NV-Lebensdauer von 9,0 ns sowie $\lambda_{e1} = 637,4$ nm mit einer NV-Lebensdauer von 8,0 ns weisen eine Reduktion des Photolumineszenzkontrastes um 1,5 % durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL auf.

Die Messkurven zeigen mehrere Auffälligkeiten, auf die im Folgenden vor der endgültigen Beurteilung der Messergebnisse eingegangen werden soll. Zum einen stellt sich die Frage, warum die gemessenen Photolumineszenzkontraste bei lediglich 4 % liegen, wo doch in der Literatur von Werten von typischerweise 20 % [183] bis hin zu 30 % [54] berichtet wird. Eine Ursache hierfür ist, dass die Farbzentren in einem per FIB-Strukturierung hergestellten Resonator und zusätzlich noch oberflächennah positioniert sind. Störstellen an der Oberfläche wirken auf die oberflächennahen NV-Zentren als Elektronenspinbad und können so zusätzlich zu dem vorhandenen ^{13}C -Kernspinbad die Kohärenzzeit reduzieren [302]. Des Weiteren sind die verwendeten hochreinen Diamantfilme nicht verspannungsfrei. Verspannungen können die Aufspaltung der beiden relevanten Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ und $m_s = +1$ lokal verändern, sodass verschiedene Emitter des Ensembles eine leicht unterschiedliche Resonanzfrequenz des Mikrowellenübergangs aufweisen. Folglich stellt die Zentralfrequenz des lorentzförmigen Einbruchs im ODMR-Spektrum lediglich eine mittlere Resonanzfrequenz aller NV-Zentren im Laserfokus dar.

Darüber hinaus limitiert die vorliegende Antennenkonstruktion die für die Rabi-Sequenzen einstellbare Mikrowellenleistung und somit auch den deduzierten Photolumineszenzkontrast. Als Nahfeldantenne wurde ein zu einer Schlinge gebogener Golddraht verwendet, der an einem 3-Achsen-Positioniersystem befestigt etwa 3 cm über Probenhalter und Probe freischwingend in den 1,6 mm großen Arbeitsabstand des Objektivs hineinragt (Kapitel 5). Bei hinreichend großen Mikrowellenleistungen beginnt die Antenne derart stark zu schwingen, dass die Bewegung sogar in einer CCD-Abbildung des Probenraums zu erkennen ist. Eine Aufnahme von Rabi-Oszillationen war nur zuverlässig möglich, wenn eine Mikrowellenleistung von weniger als 0,2 W eingespeist wurde. Wird die Mikrowellenleistung erniedrigt, so wird der $m_s = +1$ -Zustand weniger effektiv populierte, der Polarisationsgrad nimmt ab. Wie bereits in Kapitel 2 dargelegt wurde, hat der erzielte Polarisationsgrad einen erheblichen Einfluss auf den erzielten Photolumineszenzkontrast (siehe etwa Abbildung 2.10). An dieser Stelle sei nochmals betont, dass das Ziel der Messreihe die Untersuchung einer möglichen Kontraständerung bei Verkürzung der Lebensdauer der NV-Zentren und nicht etwa das Messen eines möglichst großen Kontrastwertes war. Bei den auf-

genommenen Rabi-Kurven ist an dieser Stelle zusätzlich anzumerken, dass bei der Untersuchung von Ensembles ein leichtes *beating* in den Messkurven aufgrund der unterschiedlichen Resonanzfrequenzen der einzelnen NV-Zentren stets vorhanden ist (siehe Kapitel 2).

Nachdem die Ursachen für die beobachteten Auffälligkeiten in den Messkurven diskutiert und geklärt wurden, können abschließend die dargelegten Messergebnisse zuverlässig beurteilt werden: Die Messergebnisse deuten darauf hin, dass der erzielte Photolumineszenzkontrast bei Verkürzung der Lebensdauer durch Abstimmen der Resonatormode auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren eine leichte Verringerung um hier gemessene 1,5% erfährt.

9.2.2 Vergleich mit einem Ratengleichungsmodell

Um das Verhalten des Photolumineszenzkontrastes bei Abstimmen der Fundamentalmode des betrachteten M0-Resonators auf die Nullphononenlinie der in der Resonatorfläche implantierten NV-Zentren nicht nur wie im vorangegangenen Abschnitt erfolgt experimentell zu untersuchen, sondern zusätzlich auch theoretisch beschreiben zu können, wird im Folgenden ein Ratengleichungsmodell nach Wolf et al. [77] eingeführt. Ein NV-Zentrum wird in diesem Modell wie in Abbildung 9.5a dargestellt als Fünf-Niveau-System bestehend aus den beiden Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$, den zugehörigen angeregten Zuständen sowie einem langlebigen, dem 1E -Singulettzustand entsprechenden Energieniveau angenommen. Zur Modellierung der internen Dynamik des NV-Zentrums während der nicht-resonanten optischen Spinauslese werden darüber hinaus weitere Vereinfachungen vorgenommen und verschiedene Annahmen getroffen, auf die im Folgenden jeweils eingegangen wird.

Für die Modellierung wird angenommen, dass die aus der nicht-resonanten Laseranregung resultierenden Anregungsraten aus den beiden Grundzuständen heraus in die angeregten Zustände gleich sind [169]. Ferner wird davon ausgegangen, dass die Emissionsrate des Übergangs vom angeregten Zustand in den Grundzustand unabhängig von der vorliegenden Spinprojektion ist [171]. Des Weiteren wird die Übergangsrate für den angeregten $m_s = 0$ -Zustand in den Singulettzustand im Folgenden nicht berücksichtigt, da diese um vier Größenordnungen kleiner ist als die entsprechende Übergangsrate für den $m_s = \pm 1$ -Zustand [170, 171, 303]. An dieser Stelle ist anzumerken, dass die Lebensdauern der angeregten Zustände trotz übereinstimmender Emissionsraten aufgrund der abweichenden Übergangsrate in den 1A -Zustand verschieden sind, der angeregte $m_s = \pm 1$ -Zustand weist stets eine geringere Lebensdauer auf als der angeregte $m_s = 0$ -Zustand [53, 165, 175]. Als weitere Modellannahme wird die Übergangsrate vom Singulettzustand in den $m_s = \pm 1$ -Grundzustand vernachlässigt, da die Rate des Übergangs in den $m_s = 0$ -Grundzustand etwa sechsmal größer ist als die Rate des Übergangs in den $m_s = \pm 1$ -Grundzustand [170, 172]. Aufgrund dieser Annahmen ist in der Modellierung eine Spinmischung durch den Mechanismus des spinselektiven *intersystem crossing* bereits inkludiert. Eine derartige Spinmischung wurde sowohl theoretisch vorhergesagt [77, 78, 172] als auch experimentell bestätigt [170].

Wird neben dem beschriebenen *intersystem crossing* keine weitere Form der Spinmischung angenommen, so wird sich bei hinreichend langer Laseranregung die gesamte modellierte Population

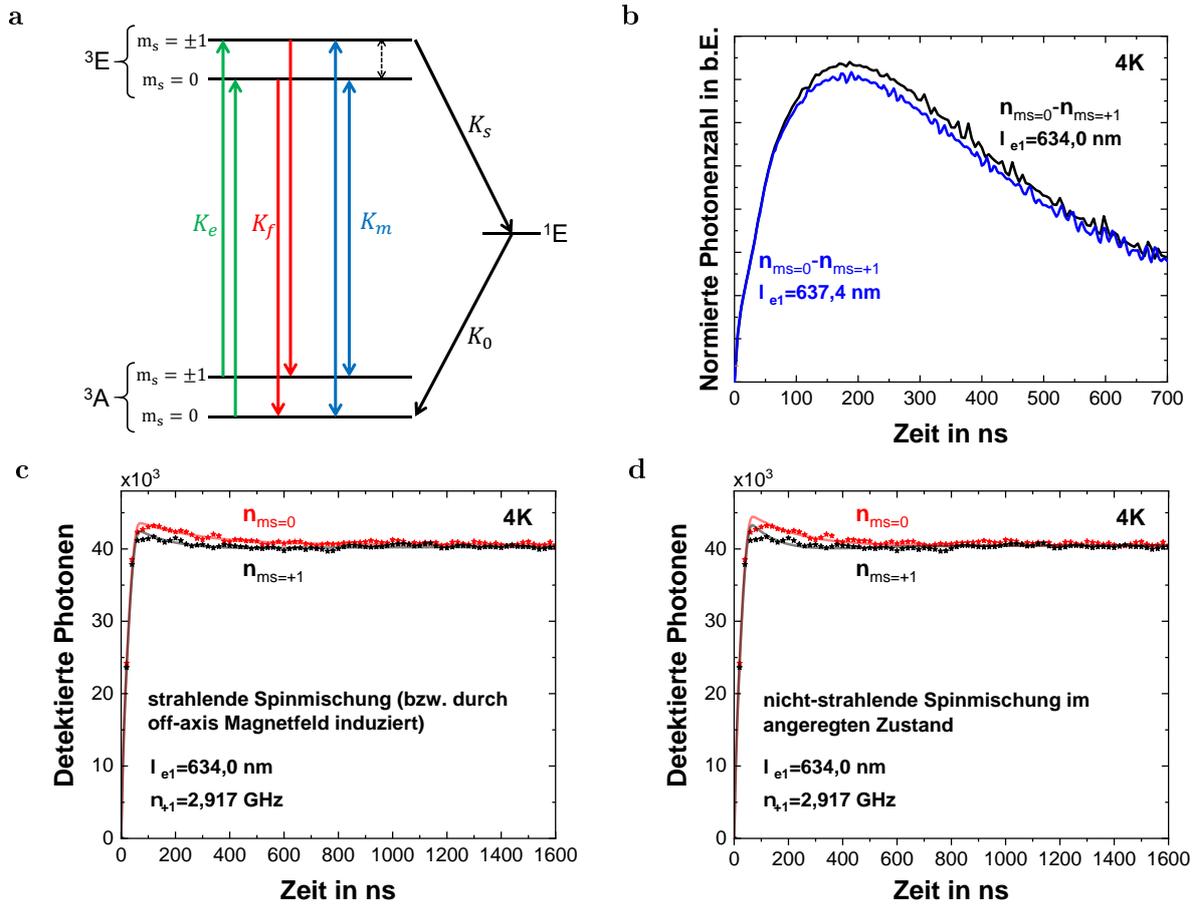


Abbildung 9.5: Modellierung mithilfe eines Ratengleichungsmodells. (a) NV-Zentrum als Fünf-Niveau-System. Die unter der Annahme einer strahlenden Spinmischung, die den gleichen Effekt wie eine durch ein *off-axis* Magnetfeld induzierte Spinmischung hat, berücksichtigten strahlenden Übergänge sind durch farbliche und die nicht-strahlenden Übergänge durch schwarze Pfeile angedeutet. Der gestrichelte Pfeil verdeutlicht die im zweiten untersuchten Szenario angenommene nicht-strahlende Spinmischung im angeregten Zustand. (b) Zeitaufgelöste Kontraste als Differenz der beiden modellierten Photolumineszenzkurven vor Abstimmen (schwarze Kurve) und Vorhersage nach Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL (blaue Kurve). Die Schwankungen in den Kurvenverläufen sind numerisch bedingt. (c und d) Gemessene zeitaufgelöste Photolumineszenzkurven bei Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand (rote Punkte) und $m_s = +1$ -Zustand (schwarze Punkte). Die modellierten Kurven (rote und schwarze Linie) wurden für die Raten $K_e = K_f = 111$ MHz nach Wolf et al. [77] einmal unter der Annahme einer strahlenden Spinmischung (c) und einmal unter der Annahme einer nicht-strahlenden Spinmischung im angeregten Zustand (d) an die Messwertverläufe angepasst.

im $m_s = 0$ -Zustand befinden und die modellierte Fluoreszenz folglich maximal werden. Stattdessen ist aber in den gemessenen zeitaufgelösten und spinabhängigen Fluoreszenzkurven sowohl der hier untersuchten NV-Zentren (Abbildung 9.4c und 9.4d) als auch weiterer NV-Zentren (siehe etwa [52, 168]) zu beobachten, dass bei hinreichend langer Laseranregung die Fluoreszenz und somit auch die Population der Zustände gegen einen für beide Spinprojektionen gemeinsamen

Gleichgewichtswert konvergieren. Es muss folglich weitere Prozesse der Spinmischung geben, die im Modell berücksichtigt werden müssen.

Wie bereits in Abschnitt 9.1.1 dargelegt, schlagen Wolf et al. [77] als zusätzliche Mechanismen der Spinmischung zum einen eine nicht-strahlende Spinmischung im angeregten Zustand vor und des Weiteren eine strahlende Spinmischung zwischen den angeregten Zuständen und den Grundzuständen des Triplettsystems. Wie in Abbildung 9.5c und 9.5d zu erkennen konnten die gemessenen Kurven unter der Annahme einer strahlenden Spinmischung zwischen den Energieniveaus des angeregten Zustands und des Grundzustands gut und insbesondere besser angepasst werden als unter der Annahme einer nicht-strahlenden Spinmischung im angeregten Zustand. Kalb et al. [170] konnten hingegen experimentell demonstrieren, dass eine strahlende Spinmischung, wenn überhaupt, nur mit einer Wahrscheinlichkeit deutlich unter 1 % auftritt und somit nicht der für NV-Zentren zusätzlich vorliegende Spinmischungsmechanismus sein kann.

Um diese auf den ersten Blick widersprüchlichen Erkenntnisse in Einklang zu bringen, muss beachtet werden, dass in unseren Messungen zur Aufspaltung der Grundzustände ein externes Magnetfeld angelegt wurde. Da die Diamantprobe eine (001)-Orientierung aufweist und das Magnetfeld im Kryostaten senkrecht zur Diamantoberfläche orientiert ist, liegt das Magnetfeld in einem Winkel von $54,7^\circ$ zur Achse des magnetischen NV-Dipolmoments an (*off-axis* Magnetfeld). Messungen konnten zeigen, dass generell bei einem Winkel zwischen Magnetfeld und Dipolachse des NV-Zentrums von mehr als 20° eine Spinmischung sowohl zwischen den angeregten Zuständen als auch zwischen den Grundzuständen des Triplettsystems vorliegt, die folglich die Wahrscheinlichkeit für ein *intersystem crossing* erhöht und somit eine Reduktion des Photolumineszenzkontrastes zur Folge hat [304]. Diese Spinmischung lässt sich effektiv genauso wie die von Wolf et al. [77] vorgeschlagene optische Spinmischung modellieren. Eine Anregung mit anschließendem Spin-Flip im angeregten Zustand hat den gleichen Effekt auf die Besetzungen und auch die emittierten Photonen wie eine Anregung unter strahlender Spinmischung, ein Emissionsübergang mit anschließendem Spin-Flip im Grundzustand den gleichen Effekt wie eine Emission unter strahlender Spinmischung. Somit kann erklärt werden, warum die Messdaten unter der Annahme einer strahlenden Spinmischung derart gut angepasst werden können.

Im Folgenden wird zusätzlich davon ausgegangen, dass die durch das *off-axis* Magnetfeld induzierten Spinmischungen für angeregten Zustand und Grundzustand übereinstimmen. Unter Berücksichtigung aller getroffenen Annahmen kann ein Satz von Rategleichungen aufgestellt werden, der die interne Dynamik des als Fünf-Niveau-System modellierten NV-Zentrums vollständig beschreibt:

$$\begin{aligned}
 \dot{B}_{G,0} &= -(K_e + 2K_m)B_{G,0} + K_f B_{E,0} + K_m B_{E,1} + K_0 B_S \\
 \dot{B}_{G,1} &= -(K_e + K_m)B_{G,1} + K_f B_{E,1} + 2K_m B_{E,0} \\
 \dot{B}_{E,0} &= K_e B_{G,0} - (K_f + 2K_m)B_{E,0} + K_m B_{G,1} \\
 \dot{B}_{E,1} &= K_e B_{G,1} - (K_f + K_s + K_m)B_{E,1} + 2K_m B_{G,0} \\
 \dot{B}_S &= K_s B_{E,1} - K_0 B_S .
 \end{aligned} \tag{9.12}$$

Hierbei geben $B_{G,0}$ und $B_{G,1}$ die Besetzungen der Grundzustandsniveaus $m_s = 0$ bzw. $m_s = \pm 1$ an, $B_{E,0}$ und $B_{E,1}$ entsprechend die Besetzungen der angeregten Zustände und B_S die Besetzung des langlebigen Singulettzustands. Die weiteren Parameter stehen für die Raten der möglichen Übergänge zwischen den einzelnen Energieniveaus, die auch in Abbildung 9.5a angedeutet sind. K_e ist dabei die spinerhaltende Anregungsrate und K_f die spinerhaltende Abklingrate der angeregten Zustände. K_s beschreibt die Übergangsrate vom angeregten $m_s = \pm 1$ -Zustand in den Singulettzustand und K_0 die Übergangsrate vom Singulettzustand in den $m_s = 0$ -Grundzustand des Triplettsystems. Die Rate K_m berücksichtigt den durch das *off-axis* Magnetfeld induzierte, neben der Spinnmischung durch das *intersystem crossing* zusätzlich vorliegenden Mechanismus der Spinnmischung. Da die im Abschnitt zuvor dargelegten Messungen stets bei der jeweiligen Sättigungsleistung erfolgten, wird für die nachfolgende Modellierung $K_e = K_f$ gesetzt.

Einige der Modellparameter wurden im Rahmen dieser Arbeit bereits experimentell bestimmt. Für das betrachtete NV-Ensemble wurde bei einer spektralen Position der Fundamentalmode des M0-Resonators von $\lambda_{e1} = 634$ nm eine Lebensdauer von 9,0 ns gemessen (Kapitel 8), dies entspricht einer Abklingrate von $K_f = 111$ MHz. Da die Messungen stets bei Laseranregung mit der jeweiligen Sättigungsleistung erfolgten, wurde ferner eine übereinstimmende Anregungsrate von $K_e = 111$ MHz angesetzt. Andere Parameter sind hingegen nach heutigem Stand, wenn überhaupt, nur mithilfe von aufwändigen Messverfahren zugänglich. Daher wurden die bereits oben genannten Parameter K_e und K_f in die Ratengleichungen eingesetzt, die Ratengleichungen gelöst und die fehlenden Raten alternativ durch Anpassen der theoretischen Photolumineszenzkurven an die experimentellen Messwertverläufe bestimmt (Abbildung 9.5c). Dadurch konnten eine Spinnmischungsrate von $K_m = 1,35$ MHz, eine Übergangsrate in den Singulettzustand von $K_s = 1,79$ MHz und eine Übergangsrate aus dem Singulettzustand in den Grundzustand des Triplettsystems von $K_0 = 5,80$ MHz ermittelt werden.

Das Verhältnis der beiden Raten K_m und K_f ergibt sich für das untersuchte NV-Ensemble zu $K_m/K_f = 1,3\%$. Ein derartiges Ratenverhältnis deutlich über 1% kann nach Kalb et al. [170] wie bereits diskutiert wurde nicht durch eine zusätzliche strahlende Spinnmischung erklärt werden, sehr wohl jedoch durch eine durch ein *off-axis* Magnetfeld induzierte zusätzliche Spinnmischung. Die Rate K_0 des Übergangs vom Singulettzustand in den $m_s = 0$ -Grundzustand ist ausschließlich durch die Lebensdauer des Singulettzustands determiniert, eine angenommene Lebensdauer von 380 ns [53] hätte somit eine zu erwartende Übergangsrate von $K_0 = 2,6$ MHz zur Folge. Die hier ermittelte Rate liegt bei $K_0 = 5,8$ MHz. Abweichungen sind für die jeweiligen Übergangsraten durchaus zu erwarten, etwa aufgrund der in den verwendeten Diamantfilmen vorhandenen Verspannungen. Lokale Verspannungen können Auswahlregeln und somit auch die Übergangswahrscheinlichkeiten in die Grundzustandsniveaus ändern. Des Weiteren wurden die gemessenen zeitaufgelösten Photolumineszenzkurven durch Verändern der zeitlichen Positionierung eines schmalen Auslesezeitfensters aufgenommen. Die gewählte Breite des Auslesezeitfensters hat vor allem Auswirkungen auf die genaue Form des Maximums in den zeitaufgelösten Photolumineszenzkurven. Wie anhand von weiteren Modellrechnungen zu erkennen war, beeinflussen auch die Formen dieser Maxima sowie auch der aufsteigenden Flanken zu Beginn der Photolumineszenzkurven die deduzierten Übergangsraten zu einem nicht unerheblichen Teil.

Die Übergangsrate K_s in den Singulettzustand kann prinzipiell auch aus den Lebensdauern der angeregten Zustände des Triplettsystems ermittelt werden. Bei tiefen Temperaturen sind die Lebensdauern des angeregten $m_s = \pm 1$ -Zustands bzw. der zugehörigen Spinprojektionen S_x und S_y jedoch schwer zugänglich. Dennoch gelang Goldman et al. [171] durch resonante Anregung und zeitaufgelöste Photonendetektion die Abschätzung der Übergangsraten von S_x und S_y des angeregten Zustands in den 1A -Singulettzustand. Je nach Spinprojektion wurden Übergangsraten zwischen < 1 MHz bis hin zu 95 MHz gemessen. Kalb et al. [170] schätzten damit vereinbar die mittlere Übergangsrate für die Spinprojektionen S_x und S_y zu 53 MHz ab. Zumindest von diesem Mittelwert weicht die hier bestimmte Übergangsrate mit $K_s = 1,79$ MHz deutlich ab, wenn auch die Rate noch im durch Goldman et al. ermittelten möglichen Wertebereich liegt. Hierbei ist anzumerken, dass die gemessenen Photolumineszenzkurven in Abbildung 9.4c mit einer angenommenen Übergangsrate von 53 MHz deutlich schlechter angepasst werden konnten als mit der aus der Anpassung bestimmten Rate $K_s = 1,79$ MHz. Die Rate K_s wirkt sich primär auf den modellierten Verlauf des Abfalls der Photolumineszenz nach Erreichen des Maximums für die Spinprojektion $m_s = +1$ aus. Auch für diese Übergangsrate ist anzumerken, dass sowohl lokale Verspannungen in der Diamantprobe als auch die genaue Form der Flanken und der Maxima in den Photolumineszenzkurven einen Einfluss auf die deduzierte Rate haben.

Die ermittelten Übergangsraten ermöglichten im Anschluss die theoretische Vorhersage des zeitaufgelösten Photolumineszenzkontrastes nach Abstimmen der Fundamentalmode des betrachteten M0-Resonators auf die Nullphononenlinie der inkorporierten NV-Zentren. Im Experiment war zuvor bereits eine durch das Abstimmen der Mode hervorgerufene Verkürzung der Lebensdauer von 9,0 ns auf 8,0 ns gemessen worden (siehe Kapitel 8). Der daraus resultierende generalisierte Purcell-Faktor beeinflusst die Abklingrate K_f und somit automatisch auch die Spinmischungsrate K_m , die hier über die Beziehung $K_m = 0,013 \cdot K_f$ verknüpft sind. In Abbildung 9.5b sind die mithilfe des Ratengleichungsmodells bestimmten zeitaufgelösten Differenzen der Photolumineszenzkurven nach Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand bzw. $m_s = +1$ -Zustand für eine Resonanzwellenlänge der $\epsilon 1$ -Mode von sowohl 634,0 nm als auch 637,4 nm dargestellt. Die theoretisch vorhergesagten Photolumineszenzkontraste liegen nach Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL bei leicht geringeren Werten als die Kontrastwerte bei einer Resonanzwellenlänge der Fundamentalmode von 634,0 nm. Dies ist im Modell so zu erwarten, da bei Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL die Übergangsrate K_f und die Spinmischungsrate K_m durch den Purcell-Effekt mit dem Purcell-Faktor skalieren, die Rate K_s in den Singulettzustand jedoch nicht beeinflusst wird. Da die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten einer Spinmischung umso größer ist, je mehr Übergänge pro Zeiteinheit auftreten, wird der erzielte Photolumineszenzkontrast erniedrigt [77]. Je nach Lage und Breite des Auslesezeitfensters liegt eine Verringerung des theoretisch vorhergesagten Photolumineszenzkontrastes um bis zu 5 % vor, für ein realistisches Auslesezeitfenster der Breite 250 ns, wie zuvor bereits etwa zur Durchführung der Rabi-Messungen gewählt wurde, ergibt sich eine durch das Abstimmen der Mode hervorgerufene theoretisch vorhergesagte Verringerung des Kontrastes um bis zu 4,1 %.

Eine derartige durch das Abstimmen der Fundamentalmode auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren hervorgerufene Verringerung des Photolumineszenzkontrastes im unteren einstelligen

Prozentbereich ist auch uneingeschränkt mit den im vorherigen Abschnitt ermittelten experimentellen Ergebnissen vereinbar. Ferner wurde die im Rahmen dieser Arbeit im Experiment beobachtete und auch theoretisch vorhergesagte Verringerung des Photolumineszenzkontrastes bei Verkürzung der Lebensdauer auch in weiteren Experimenten qualitativ so beobachtet [78].

9.2.3 Implikationen für das Signal-Rausch-Verhältnis

Das Signal-Rausch-Verhältnis ist gemäß Gleichung (9.3) sowohl von dem Photolumineszenzkontrast als auch von der Anzahl der detektierten Photonen bei der optischen Spinauslese nach Präparation der NV-Zentren in der Spinprojektion $m_s = 0$ (*bright state*) abhängig. Im Folgenden wird gestützt durch die zuvor dargelegten Messergebnisse sowie durch die Vorhersagen des eingeführten Ratengleichungsmodells die Annahme getroffen, dass sich der Photolumineszenzkontrast durch das Abstimmen der $e1$ -Mode des M0-Resonators auf die Nullphononenlinie des betrachteten NV-Ensembles um 4,1 % verringert, etwa bei Wahl eines geeigneten 250 ns breiten Auslesezeitfensters wie zuvor dargelegt wurde. Die erzielte relative SNR-Erhöhung ζ wird folglich durch die Anzahlen N_0 der detektierten Photonen bei einer spektralen Position der Mode von 634,0 nm, N_0^* nach Abstimmen der Mode bei 637,4 nm sowie durch die zugehörigen Kontraste C und C^* mit $C^*/C = 0,959$ festgelegt. Mit Gleichung (9.3) sowie der hier zutreffenden Annahme, dass kleine Kontrastwerte vorliegen, gilt:

$$\zeta = \frac{\text{SNR}^*}{\text{SNR}} = \sqrt{\frac{N_0^*}{N_0}} \cdot \frac{C^*}{C} \cdot \frac{\sqrt{2-C}}{\sqrt{2-C^*}} \approx \sqrt{\frac{N_0^*}{N_0}} \cdot \frac{C^*}{C} . \quad (9.13)$$

Bei der optischen Spinauslese von NV-Zentren sind zwei grundlegende Fälle zu unterscheiden. Im ersten Fall werden lediglich die über die Nullphononenlinie emittierten Photonen zur Unterscheidung der beiden betrachteten Spinprojektionen herangezogen. Dies ist etwa erforderlich, wenn zur Spinauslese, wie beispielsweise in Experimenten zur Demonstration der schlupflochfreien Verletzung der Bellschen Ungleichung erfolgt [72], ununterscheidbare Photonen benötigt werden. Kann auf das Kriterium der Ununterscheidbarkeit hingegen verzichtet werden, so werden im Allgemeinen möglichst alle emittierten Photonen breitbandig zur optischen Spinauslese herangezogen. Dieser zweite Fall liegt beispielsweise vor, wenn NV-Zentren als hochempfindliche Sensoren zur Detektion selbst von kleinsten Magnetfeldern eingesetzt werden [55–57, 289].

Durch das Abstimmen der Resonatormode verkürzt sich die Lebensdauer der betrachteten NV-Zentren von 9,0 ns bei einer spektralen Position der Mode von 634,0 nm auf 8,0 ns bei einer spektralen Position der Mode von 637,4 nm. Folglich wird die Anzahl der pro Messung detektierten Photonen um einen Faktor 1,13 gesteigert. Zusätzlich wird jedoch durch das Abstimmen der Mode auch die Sammeffizienz der ZPL-Photonen modifiziert. Simulationen sagen bei einer spektralen Modenposition von 634,0 nm für die bei 637,4 nm emittierten ZPL-Photonen eine Sammeffizienz von 3,9 % voraus, die durch das Abstimmen der Resonatormode auf einen Wert von 3,4 % vermindert wird (Kapitel 7). Werden zur Spinauslese lediglich die über die Nullphononenlinie emittierten Photonen herangezogen, so nimmt die Anzahl an detektierten Photonen folglich um einen Faktor von 1,15 ab. Des Weiteren ändert sich durch das Abstimmen der Mo-

de auch der Anteil der ZPL-Photonen an der Gesamtemission. Während dieser Emissionsanteil bei einer spektralen Modenposition von 634,0 nm lediglich 2,1 % beträgt, erhöht sich der Anteil bei einer Modenposition von 637,4 nm auf 18,3 % (Kapitel 8). Erfolgt die optische Spinauslese ausschließlich anhand der Photonen in einem schmalen Filterfenster um die NV-ZPL, so ergibt sich somit ein zusätzlicher Erhöhungsfaktor von 8,7. Unter Berücksichtigung der ermittelten Faktoren beträgt die relative Änderung der pro Messung detektierten Photonenzahl für das betrachtete NV-Ensemble insgesamt $N_0^*/N_0 = 1,13/1,15 \cdot 8,7 = 8,5$ und der abgeschätzte Faktor der SNR-Erhöhung folglich $\zeta = 2,8$. Das Signal-Rausch-Verhältnis wird bei schmalbandiger Photonendetektion durch das Abstimmen der $e1$ -Mode somit fast verdreifacht.

Werden die Photonen zur optischen Spinauslese hingegen breitbandig detektiert, so kann zwar von der angesprochenen Erhöhung des Emissionsanteils in die Nullphononenlinie nicht mehr profitiert werden, die Anzahl an pro Messung detektierten Photonen wird jedoch durch die Lebensdaueränderung bei Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL weiterhin um einen Faktor 1,13 erhöht. Um die relative Änderung der detektierten Photonenzahl insgesamt abschätzen zu können, muss auch in diesem Fall der Einbruch der Sammeffizienz bei der Resonanzwellenlänge der $e1$ -Mode zusätzlich mit berücksichtigt werden. Bei einer spektralen Modenposition von 634,0 nm ist der Anteil der in die Mode emittierten Photonen an der Gesamtemission im Vergleich zu einem Emissionsanteil von 18,3 % bei einer Modenposition von 637,4 nm sehr klein. Unter Vernachlässigung dieses kleinen Emissionsanteils wird die Anzahl an detektierten Photonen aufgrund der verminderten Sammeffizienz durch das Abstimmen der Mode auf die Nullphononenlinie der betrachteten NV-Zentren um einen Faktor von höchstens 1,03 als obere Abschätzung reduziert. Insgesamt ergibt sich die relative Änderung der Photonenzahl somit zu $N_0^*/N_0 = 1,13/1,03 = 1,10$. Das Signal-Rausch-Verhältnis wird bei breitbandiger Detektion durch das Abstimmen der $e1$ -Mode folglich um lediglich etwa 0,5 % gesteigert.

In beiden betrachteten Fällen wird somit durch das Abstimmen der Resonatormode auf die Nullphononenlinie der betrachteten NV-Zentren eine Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese erzielt, bei schmalbandiger Photonendetektion um die NV-ZPL ist der Effekt durch das Abstimmen der Mode jedoch mit einer nahezu Verdreifachung des SNR um ein Vielfaches größer als bei breitbandiger Photonendetektion.

Wird als abschließende Überlegung rein hypothetisch angenommen, dass eine optimale Kopplung des betrachteten NV-Ensembles an die Fundamentalmode des untersuchten M0-Resonators vorliegen würde (Quanteneffizienz 1, optimale räumliche Positionierung der implantierten NV-Zentren im Feldmaximum der Mode, optimale Dipolorientierung relativ zum Modenfeld), so wird eine Verkürzung der Lebensdauer durch Abstimmen der Mode auf die Nullphononenlinie der NV-Zentren um einen Faktor von 2,8 vorhergesagt (Kapitel 8). Darüber hinaus würde der Anteil der in die $e1$ -Mode emittierten Photonen in Resonanz mit der NV-ZPL aufgrund des in diesem Falle erzielten Purcell-Faktors von $F^* = 3,9$ etwa 80 % betragen. Werden zur optischen Spinauslese erneut nur die in ein schmales Filterfenster um die ZPL emittierten Photonen herangezogen, so würde die relative Änderung der Photonenzahl durch das Abstimmen der Mode $N_0^*/N_0 = 2,8/1,15 \cdot 37,9 = 92$ betragen. Obwohl das eingeführte Modell bei einem derartigen Purcell-Faktor eine Abnahme des Kontrastes durch das Abstimmen der Fundamentalmode um

insgesamt 35 % voraussagt, könnte das abgeschätzte Signal-Rausch-Verhältnis somit insgesamt sogar um einen Faktor $\zeta = 6,2$ gesteigert werden. Selbst bei breitbandiger Detektion könnte der SNR durch Abstimmen der Resonatormode auf die NV-ZPL immer noch um etwa 7 % erhöht werden. Eine bessere Emitter-Resonator-Kopplung könnte somit die erzielte SNR-Erhöhung weiter steigern.

9.3 Zusammenfassung und Ausblick

Im vorliegenden Kapitel wurde untersucht, wie sich eine durch das Abstimmen einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren hervorgerufene Verkürzung der Lebensdauer verbunden mit einer Überhöhung der ZPL-Emission auf das Signal-Rausch-Verhältnis bei der optischen Spinauslese auswirkt. Das Signal-Rausch-Verhältnis wurde in diesem Rahmen als abgeleitete Größe eingeführt, die durch den Photolumineszenzkontrast sowie die Anzahl der bei Laseranregung detektierten Photonen nach Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand festgelegt ist. Die AFM-Technik erlaubte die zielgenaue Implantation von Stickstoffionen in das Feldmaximum der Fundamentalmode des betrachteten M0-Resonators mit Gütefaktor $Q = 2060$, nach umfangreichen Nachbehandlungsmaßnahmen konnten in der Resonatorfläche NV-Zentren nachgewiesen werden. Darüber hinaus ermöglichten die bereits eingeführten Abstimmtechniken die deterministische Abstimmung der Fundamentalmode auf die Nullphononenlinie des implantierten NV-Ensembles mit einer damit einhergehenden Verkürzung der Lebensdauer der an den Resonator gekoppelten Quantenemitter von 9,0 ns auf 8,0 ns.

Um die durch die Verkürzung der Lebensdauer erzielte SNR-Erhöhung abschätzen zu können, wurde zunächst der Photolumineszenzkontrast hinsichtlich einer möglichen durch das Abstimmen der Fundamentalmode des M0-Resonators hervorgerufenen Änderung hin untersucht. Zu diesem Zweck wurde ein kombiniertes Verfahren bestehend aus drei aufeinanderfolgenden Messungen eingesetzt, das die zuverlässige Bestimmung des zeitaufgelösten Kontrastes sowohl bei einer spektralen Position der Mode von 634,0 nm als auch bei 637,4 nm in Resonanz mit der Nullphononenlinie der betrachteten NV-Zentren ermöglichte. Die erfolgten Messungen sowie die zusätzliche Anwendung eines theoretischen Ratengleichungsmodells ließen die Schlussfolgerung zu, dass der Photolumineszenzkontrast durch die Verkürzung der Lebensdauer bei Abstimmen der Mode des betrachteten M0-Resonators auf die NV-ZPL leicht verringert wird, in einem für die optische Spinauslese typischen Auslesezeitfenster der Breite 250 ns um bis zu 4,1 %.

Diese Erkenntnis erlaubte im Anschluss die Abschätzung der durch das Abstimmen der Mode hervorgerufenen Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis zusammen mit der ermittelten Änderung der detektierten Photonenzahl, unter Berücksichtigung der Verkürzung der Lebensdauer, der Modifizierung der Sammeleffizienz sowie der Änderung des Anteils der ZPL-Photonen an der Gesamtemission. Erfolgt die optische Spinauslese schmalbandig anhand der in einem kleinen Filterfenster um die NV-ZPL detektierten Photonen, so wird das Signal-Rausch-Verhältnis durch das Abstimmen der Fundamentalmode des M0-Resonators auf die Nullphononenlinie des betrachteten NV-Ensembles nahezu verdreifacht. Bei breitbandiger Photonendetektion wird eine

Steigerung um lediglich 0,5% erzielt. Darüber hinaus zeigten weitere Analysen, dass die vorliegende suboptimale Kopplung der NV-Zentren an die Mode des betrachteten M0-Resonators die SNR-Erhöhung limitiert. Eine bessere Emitter-Resonator-Kopplung würde Steigerungsfaktoren des Signal-Rausch-Verhältnis durch Abstimmen der Mode von bis zu 6,2 bei schmalbandiger und bis zu 1,07 bei breitbandiger optischer Spinauslese ermöglichen.

Die durch die Resonatorkopplung erzielte Steigerung des Signal-Rausch-Verhältnis in der hier verwendeten (001)-Diamantprobe bewegt sich zumindest bei schmalbandiger Photonendetektion mit einer nahezu Verdreifachung im Rahmen der auch durch andere Methoden erzielten SNR-Erhöhung. Wie in Abschnitt 9.1.1 bereits dargelegt wurde, konnte der SNR beispielsweise durch Verwenden einer (111)-Diamantprobe mit einer optimalen Orientierung der NV-Dipole um einen Faktor 1,3 [296], durch den Einsatz von Festkörperimmersionslinsen zusammen mit einer (111)-Diamantprobe um einen Faktor 5 [53] oder durch das Ausnutzen bedingter Flip-Flop-Prozesse zwischen dem Elektronenspin eines NV-Zentrums und dem Kernspin des intrinsischen ^{15}N -Atoms um einen Faktor 1,7 [168] gesteigert werden.

In zukünftigen experimentellen Studien sollte zum einen untersucht werden, wie sich der ermittelte zeitabhängige Photolumineszenzkontrast nach Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL nicht nur im Vergleich zu einer spektral verschobenen Modenposition, sondern auch im Vergleich zu dem identischen Emitter oder Ensemble ganz ohne Einfluss des Resonators verändert. Hierzu könnte ein NV-Zentrum wie bereits in Kapitel 8 vorgeschlagen wurde zunächst in einer unstrukturierten Diamantmembran erzeugt und umfassend charakterisiert werden. Nach erfolgter Herstellung einer geeigneten photonischen Kristallstruktur um ein derartiges Farbzentrum herum könnte die Resonatormode auf die NV-ZPL abgestimmt und der etwa mit dem eingeführten zuverlässigen Verfahren bestimmte zeitaufgelöste Photolumineszenzkontrast mit dem Kontrastverlauf des gleichen Emitters ohne Resonator abgeglichen werden. Die so gewonnenen Erkenntnisse würden im Anschluss etwa die Abschätzung der gesamten durch die Emitter-Resonator-Kopplung hervorgerufenen SNR-Erhöhung im Vergleich zum identischen Emitter in der unstrukturierten Diamantmembran zuverlässig ermöglichen. Des Weiteren könnten systematische Kontrastmessungen bei verschiedenen Anregungsleistungen sowie bei weiteren durch den Purcell-Effekt veränderten Lebensdauern entscheidende Erkenntnisse über die internen Vorgänge in den NV-Zentren während einer nicht-resonanten Anregung liefern und somit zukünftig zuverlässige Vorhersagen etwa über das Verhalten des Photolumineszenzkontrastes sowie des Signal-Rausch-Verhältnis bei der Kopplung eines NV-Zentrums an eine Resonatormode ermöglichen.

Um die erzielte Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis nicht nur in einem *proof-of-principle* Experiment wie im vorliegenden Kapitel erfolgt grundlegend demonstrieren, sondern auch zukünftig in Anwendungen gewinnbringend einsetzen zu können, ist als primäre Optimierungsmaßnahme die Verwendung einer stabileren, schwingungsfreien Antennenkonstruktion anzuführen, mit damit verbunden höher einstellbaren Mikrowellenleistungen und höheren resultierenden Kontrastwerten. In den vergangenen Jahren wurden zahlreiche Designs als Alternative zu einer freischwingenden Drahtantenne entwickelt, wie etwa direkt auf die Diamantoberfläche aufgedampfte metallische Leiterstrukturen (*Striplines*) [305]. Bei der Verwendung derartiger *Striplines* ist jedoch zu beachten, dass die bedampften Diamantproben weder in Säurebädern noch im Ofen behan-

delt werden dürfen. Ein Aufbringen der Leiterstrukturen ist folglich erst nach fast vollständig abgeschlossener Prozessierung der Probe möglich, verbunden mit dem Risiko der Zerstörung der bereits hergestellten, implantierten und abgestimmten Resonatoren in den photonischen Kristallstrukturen. Eine vielversprechende Alternative stellen ringförmige Antennen dar [306–308], die ohne aufwändige Prozessierung in einem gewissen Abstand unterhalb der Diamantmembran fixiert werden können. Derartige Antennen sind darüber hinaus in der Lage, gleichmäßige Mikrowellenfelder in Flächen bis 1 mm^2 zu erzeugen [308]. Ein exaktes Positionieren der Mikrowellenantenne würde bei den vorliegenden Strukturgrößen somit in Zukunft obsolet werden. Da der Abstand zwischen Probe und Antenne jedoch auch nicht allzu groß gewählt sein sollte, wäre das ebenfalls hergestellte Volldiamantsystem dem hier verwendeten hybriden Probensystem, das aufgrund des verwendeten Substrats einen Mindestabstand von $500\text{ }\mu\text{m}$ zwischen NV-Zentren und Mikrowellenantenne bedingt, für zukünftige Anwendungen vorzuziehen.

10 Zusammenfassung

Das Stickstoff-Fehlstellenzentrum in Diamant zeichnet sich durch zahlreiche herausragende Eigenschaften aus, wie etwa die außerordentlich lange Kohärenzzeit des Elektronenspins von bis zu 2 ms [60, 61], die durch eine dynamische Entkopplung von der Diamantumgebung sogar auf über eine Sekunde verlängert werden kann [62, 63]. Der Grundzustand des NV-Zentrums weist eine Tripletstruktur mit zwei Unterniveaus auf, denen die Spinprojektionen $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ zugeordnet werden können [48]. Deren Nullfeldaufspaltung liegt im Frequenzbereich gängiger Mikrowellenquellen [49] und erlaubt somit die kohärente Spinmanipulation durch geeignete Mikrowellenpulse [50]. Die rein optische Initialisierung und Auslese des NV-Elektronenspins werden durch spinabhängige Übergänge vom angeregten Zustand in einen metastabilen Zwischenzustand ermöglicht [51]. Aus der Langlebigkeit dieses Zwischenzustands resultiert eine spinabhängige Photolumineszenz des NV-Zentrums und aus dessen präferiertem Zerfall in den $m_s = 0$ -Grundzustand eine Spininitialisierung innerhalb nur weniger optischer Zyklen. Darüber hinaus können NV-Zentren ununterscheidbare Photonen über die Nullphononenlinie emittieren, die etwa vermittelt durch eine Emitter-Photon-Verschränkung [68] eine langreichweitige Verschränkung zweier NV-Zentren ermöglichen [72] und somit das NV-Zentrum zu einem vielversprechenden Kandidaten für die Realisierung eines Qubits als Kernbaustein eines Quantenrepeaters [293, 294], Quantenspeichers [66, 290, 291] oder auch Quantennetzwerks [15, 293] machen.

Die bei einer derartigen langreichweitigen Verschränkung erzielte Verschränkungsrate sowie die Effektivität der optischen Spinauslese werden maßgeblich durch den geringen Anteil der ZPL-Photonen an der Gesamtemission limitiert [71, 72], lediglich etwa 3% der NV-Emission erfolgt über die Nullphononenlinie. Um diese Limitierung zu umgehen, sollten NV-Zentren an eine auf die NV-ZPL abgestimmte Resonatormode gekoppelt werden, die neben einer guten räumlichen Lokalisierung, quantifiziert durch ein kleines Modenvolumen V ferner eine gute zeitliche Führung des Lichts, quantifiziert durch einen hohen Gütefaktor Q aufweist. In dieser Arbeit wurden hierzu Moden von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen untersucht, die aufgrund ihrer kleinen Modenvolumina bei hohen Gütefaktoren und der daraus resultierenden hohen Purcell-Faktoren für die angestrebte Emitter-Resonator-Kopplung bestens geeignet sind. Ferner ist die in einem derartigen monolithischen System vorliegende Emitter-Resonator-Kopplung, etwa im Gegensatz zur Emitter-Resonator-Kopplung unter Verwendung von Faserresonatoren, immun gegen Vibrationen der Umgebung. Die eingesetzten photonischen Kristallstrukturen bestehen aus hexagonal angeordneten Luftzylindern in einer wenige hundert Nanometer dicken Diamantschicht. Durch die periodische Variation des Brechungsindex bildet sich eine photonische Bandstruktur aus, die bei geeigneten Durchmessern der Luftzylinder eine Bandlücke aufweist. Lokale Störungen der Periodizität können Resonatoren mit geführten Moden

mit Frequenzen innerhalb der photonischen Bandlücke erzeugen. Durch das Verschieben zweier benachbarter Luftzylinder wird ein als M0-Resonator bezeichneter Punktdefekt hervorgerufen, bei Fehlen von i linear angeordneten Luftzylindern liegt ein M_i -Resonator vor.

Zunächst wurden in dieser Arbeit M0, M3 und M7-Resonatoren in FDTD-Simulationen umfassend charakterisiert und auf ihre Eignung hinsichtlich der angestrebten Emitter-Resonator-Kopplung hin untersucht. Der M3-Resonator wurde zusätzlich mithilfe des Prinzips des *gentle confinement* [214] sowie Fourieranalysen simulationsgestützt optimiert. Für den M0-Resonator wurde ein bereits entwickeltes optimiertes Design implementiert [87]. Insbesondere die Fundamentalmode des simulierten M0-Resonators stellte sich aufgrund eines vorhergesagten Gütefaktors von $Q = 320\,000$ bei einem Modenvolumen von lediglich $V = 0,35 (\lambda/n)^3$ als vielversprechender Kandidat für die angestrebte Emitter-Resonator-Kopplung heraus.

Trotz der außergewöhnlichen Härte und sehr guten chemischen Beständigkeit von Diamant konnten zwei für die in dieser Arbeit an sie gestellten Anforderungen gleichermaßen geeigneten Probensysteme mit freistehenden Diamantmembranen für die spätere FIB-Strukturierung der photonischen Nanostrukturen hergestellt werden: Ein hybrides System bestehend aus einem hochreinen Diamantfilm, der mithilfe einer Klebeschicht auf einem mit quadratischen Fenstern vorstrukturierten Siliziumsubstrat befestigt und anschließend mithilfe eines entwickelten RIE-Prozesses von $30\ \mu\text{m}$ beginnend auf die endgültige Schichtdicke von wenigen hundert Nanometern ausgedünnt werden konnte sowie ein Volldiamantsystem, das durch Maskierung eines hochreinen Diamantfilms mithilfe einer strukturierten Glasmaske ebenfalls mithilfe des entwickelten RIE-Prozesses selektiv bis auf die endgültige Schichtdicke geätzt wurde. Die Kombination verschiedener Charakterisierungsmethoden erlaubte anschließend sowohl lokale Defekte als auch Variationen in der Schichtdicke der hergestellten dünnen Diamantfilme mit einer hohen Genauigkeit von wenigen Nanometern zu detektieren. Basierend auf den Erkenntnissen dieser Charakterisierungen ist es im Rahmen dieser Arbeit gelungen, in den hergestellten dünnen Diamantmembranen defektfreie Regionen gleichmäßiger und vor allem mit einer in den FDTD-Simulationen zuvor ermittelten optimalen Schichtdicke zuverlässig auszuwählen und in diesen Regionen im Anschluss zweidimensionale photonische Kristallstrukturen reproduzierbar herzustellen.

Darüber hinaus wurden in dieser Arbeit entwickelte und umgesetzte Optimierungen der FIB-Strukturierung der Resonatoren dargelegt. Dadurch konnten durch den FIB-Prozess bedingte Fabrikationsabweichungen wie etwa die konische Form der Lochseitenwände oder auch Variationen in den Lochpositionen und Lochdurchmessern drastisch verringert und ein Einsinken der Nanostrukturen sogar vollständig unterbunden werden. Es kann davon ausgegangen werden, dass weitere Optimierungsversuche der FIB-Strukturierung von photonischen Kristallstrukturen nicht mehr zielführend sind, die Möglichkeiten der FIB-Prozessierung sind durch die in dieser Arbeit beschriebenen Optimierungen höchstwahrscheinlich ausgereizt. Aufgrund des optimierten Herstellungsprozesses der Nanostrukturen sowie der entwickelten Charakterisierungsmethodik der Diamantmembranen konnten bei 95% der hergestellten M0, M3 und M7-Resonatoren Moden optisch detektiert werden. Die erzielten Gütefaktoren der Resonatormoden liegen mit bis zu $Q = 8250$ im Bereich der aktuell auch durch RIE-Prozessierung erreichbaren Gütefaktoren der Moden von Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallstrukturen mit kleinen

Modenvolumina (in der Größenordnung einer kubischen Wellenlänge) und einer spektralen Modenposition in der Nähe der Nullphononenlinie von NV-Zentren [81,85,219].

Bei Abstimmen einer Mode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren tritt neben einer Erhöhung des Anteils der ZPL-Photonen an der Gesamtemission und einer Erhöhung der Gesamtemissionsrate auch eine Veränderung der Abstrahlcharakteristik des aus einer photonischen Kristallstruktur emittierten Lichts auf, die das Aufsammeln der ausgesendeten Photonen durch ein vertikal über der Diamantmembran positioniertes Objektiv maßgeblich beeinflusst. Im Rahmen dieser Arbeit wurden daher auch Simulationen zur Untersuchung der Abstrahlung von Licht aus M0, M3 und M7-Resonatoren unter Berücksichtigung der Keilform der Löcher als dominierende Fabrikationsabweichung der hergestellten Nanostrukturen durchgeführt. Zentrale Kenngrößen der Auskopplung des abgestrahlten Lichts wie etwa die Emissionsanteile in die beiden Halbräume oder auch die Sammeleffizienz konnten für die untersuchten Resonatortypen jeweils wellenlängenabhängig in einem breitbandigen Spektralbereich ermittelt werden. Mithilfe der durchgeführten Simulationen konnte unter anderem gezeigt werden, dass die Sammeleffizienz bei den Resonanzwellenlängen der Moden im Allgemeinen deutliche Einbrüche aufweist. Insbesondere für die Fundamentalmode, die unter allen Moden eines Resonators den mit Abstand größten Gütefaktor und somit die beste Eignung für eine potenzielle Emitter-Resonator-Kopplung aufweist, nimmt die simulierte Sammeleffizienz mit Werten von 3,4 % für den M0-Resonator, 3,8 % für den M3-Resonator und 3,9 % für den M7-Resonator jeweils ihr globales Minimum an, wohingegen zumindest für Wellenlängen innerhalb der photonischen Bandlücke ansonsten deutlich bessere Werte um 25 % erzielt werden. In dieser Arbeit konnte das für den jeweiligen Resonatortyp spezifische, wellenlängenabhängige Verhalten der Sammeleffizienz darüber hinaus vollständig erklärt werden. Die Einbrüche der Sammeleffizienz bei den Resonanzwellenlängen der Fundamentalmoden resultieren beispielsweise aus einem verminderten Emissionsanteil in den oberen Halbraum, in Kombination mit einer veränderten Abstrahlung von Photonen vermehrt in Polarwinkel im Fernfeld, die außerhalb des Öffnungswinkels des Objektiv liegen.

Weitere Simulationen zeigten, dass die Sammeleffizienz durch Implementierung eines unterhalb der Diamantmembran positionierten Goldspiegels global und insbesondere auch bei den Resonanzwellenlängen der Fundamentalmoden um einen Faktor 1,5 für den M7-Resonator, 1,7 für den M0-Resonator und 2,2 für den M3-Resonator gesteigert werden kann, ohne die Gütefaktoren der Moden negativ zu beeinflussen. Auch die Herstellbarkeit eines derartigen hinsichtlich der Sammeleffizienz optimierten Probensystems wurde in dieser Arbeit gezeigt. Dazu wurde der entwickelte Fabrikationsprozess dünner freistehender Diamantmembranen mit darin per FIB-Strukturierung hergestellten Resonatoren modifiziert und um ein Gold-Gold-Verbindungsverfahren ergänzt. Die eingesetzten Nanofabrikationstechniken erlaubten die Anbringung eines Goldspiegels in dem in den Simulationen zuvor ermittelten optimalen Abstand zur Diamantoberfläche bei gleichzeitiger Garantie einer freistehenden Diamantmembran. Wenn auch dieses hinsichtlich der Sammeleffizienz optimierte Probensystem aufgrund der Gold-Gold-Verbindungsschicht nicht für das Erhitzen auf hohe Temperaturen, wie etwa später zum Abstimmen einer Mode auf die NV-ZPL durch Oxidation erforderlich, geeignet ist und daher in dieser Arbeit noch nicht gewinnbringend eingesetzt werden konnte, so weist es doch Potenzial für zukünftige Experimente auf, bei denen der Fokus

auf dem Aufsammeln von möglichst jedem einzelnen emittierten Photon liegt und kein Erhitzen des optimierten Probensystems erforderlich ist.

In dieser Arbeit konnten nach Herstellung und optischer Charakterisierung der Nanostrukturen Stickstoffionen mithilfe einer hochauflösenden Nanoimplantationstechnik zielgenau in die Resonatorflächen von M0, M3 und M7-Resonatoren eingebracht werden. Die Probenoberfläche wurde hierzu durch eine strukturierte AFM-Spitze maskiert, eine als Apertur genutzte Öffnung in der AFM-Spitze nach durchgeführten AFM-Abrasterungen der Umgebung einer Nanostruktur präzise über dem Feldmaximum einer Resonatormode ausgerichtet und die Ionen durch die Apertur implantiert. Umfangreiche Nachbehandlungsmaßnahmen in Form von Erhitzen auf Temperaturen von 900 °C in Vakuum, 450 °C in Luftatmosphäre sowie oxidierenden Säurebädern gewährleisteten im Anschluss die Bildung von NV-Zentren sowie deren Konvertierung in den angestrebten negativen Ladungszustand. In anschließend durchgeführten optischen Analysen konnte nachgewiesen werden, dass in allen implantierten Nanostrukturen im Bereich der Resonatorflächen NV-Zentren mit durch spektrale Diffusion inhomogen verbreiterten Nullphononenlinien mit Halbwertsbreiten von wenigen hundert Gigahertz erzeugt wurden und darüber hinaus die AFM-Spitze eine hinreichende Abschirmung für die umliegenden Probenbereiche bot.

Im Anschluss daran wurden zwei Abstimmungstechniken eingesetzt, ein Oxidationsverfahren durch Erhitzen der Probe auf eine Temperatur von 525 °C in Luftatmosphäre sowie ein Verfahren durch Anlagerung von im verwendeten Kryostaten vorhandenen Restgasmolekülen. In Kombination erlaubten diese Abstimmungstechniken die deterministische Abstimmung der Fundamentalmode eines M0-Resonators mit Gütefaktor $Q = 2060$ auf die Nullphononenlinie der in der Resonatorfläche erzeugten NV-Zentren unter parallel erfolgender spektroskopischer Kontrolle und ohne signifikante Verminderung des Gütefaktors der Mode. Im Vergleich zu einer spektralen Modenposition von 634 nm konnte die ZPL-Intensität in Resonanz deutlich erhöht, die Sättigungszahlrate in einem schmalen Filterfenster um die ZPL um einen Faktor 2,8 gesteigert und die NV-Lebensdauer von 9,0 ns auf 8,0 ns verkürzt werden. Anhand der spektralen Intensitätsverteilung konnte unter Berücksichtigung der simulierten Sammeleffizienz ein Kopplungsfaktor der spontanen Emission von $\beta^* = 18,7\%$ sowie ein generalisierter Purcell-Faktor von $F^* = 0,224$ in Resonanz ermittelt werden.

Ein durch Auffèves et al. [200] entwickeltes und durch Albrecht et al. [149] zur Beschreibung der Kopplung eines breitbandigen Emitters an eine Resonatormode erweitertes Ratengleichungsmodell erlaubte auch die Bestimmung des theoretisch zu erwartenden generalisierten Purcell-Faktors. Dazu wurde das Emissionsspektrum der implantierten NV-Zentren ohne Einfluss des M0-Resonators abgeschätzt und die für die Modellierung benötigten Parameter der NV-Emission durch Anpassung des Spektrums durch acht Lorentzkurven ermittelt. Unter Berücksichtigung der mittleren Dipolorientierung, der Quanteneffizienz sowie der erzielten lateralen und vertikalen Positionierung der im untersuchten M0-Resonator inkorporierten NV-Zentren stimmten der theoretisch vorhergesagte und der experimentell ermittelte Purcell-Faktor überein. Die Anwendung des Ratengleichungsmodells bot ferner die Möglichkeit, Limitierungen des erzielten Purcell-Faktors zu untersuchen. Dabei zeigte sich, dass die Eigenschaften der NV-Zentren wie die Halbwertsbreite der Nullphononenlinie oder auch die Quanteneffizienz den generalisierten Purcell-Faktor stärker

beeinflussen als der Gütefaktor der Mode und darüber hinaus die laterale und vertikale Positionierung sowie die relative Orientierung der Emissionsdipole der NV-Zentren zum Modenfeld entscheidende Limitierungen darstellen.

In der vorliegenden Arbeit wurde darüber hinaus anhand des betrachteten M0-Resonators untersucht, wie sich das Abstimmen einer Resonatormode auf die Nullphononenlinie von NV-Zentren auf die durch das Signal-Rausch-Verhältnis quantisierte Schärfe der Unterscheidbarkeit der beiden möglichen Spinzustände bei der optischen Spinauslese auswirkt. Das Signal-Rausch-Verhältnis wurde in dieser Arbeit als abgeleitete Größe eingeführt, die durch den Photolumineszenzkontrast der beiden Spinzustände $m_s = 0$ und $m_s = \pm 1$ sowie die Anzahl der detektierten Photonen nach Präparation der NV-Zentren im $m_s = 0$ -Zustand festgelegt ist.

Um die durch das Abstimmen der Fundamentalmode auf die Nullphononenlinie der im betrachteten M0-Resonator inkorporierten NV-Zentren erzielte SNR-Erhöhung abschätzen zu können, wurde zunächst die durch das Abstimmen der Mode hervorgerufene Änderung des Photolumineszenzkontrastes bestimmt. Zu diesem Zweck wurde ein entwickeltes kombiniertes Verfahren bestehend aus drei aufeinanderfolgenden Messungen eingesetzt, bestehend aus einer ODMR-Messung unter kontinuierlicher Laseranregung und Mikrowelleneinstrahlung, einer Rabi-Messung sowie der anschließenden Aufnahme der beiden zu den möglichen Spinzuständen gehörenden zeitaufgelösten Fluoreszenzkurven. Dadurch konnte der zeitaufgelöste Kontrast sowohl bei einer spektralen Position der Mode von 634,0 nm als auch 637,4 nm in Resonanz mit der Nullphononenlinie der NV-Zentren zuverlässig und reproduzierbar bestimmt werden. Die erfolgten Messungen sowie die zusätzliche Anwendung eines von Wolf et al. [77] entwickelten theoretischen Ratengleichungsmodells ließen die Schlussfolgerung zu, dass der Photolumineszenzkontrast bei Abstimmen der Mode des betrachteten M0-Resonators auf die NV-ZPL leicht verringert wird, in einem für die optische Spinauslese typischen Auslesezeitfenster der Breite 250 ns um bis zu 4,1 %. Diese Erkenntnis erlaubte im Anschluss zusammen mit der ermittelten Änderung der detektierten Photonenzahl, unter Berücksichtigung der Verkürzung der Lebensdauer, der Modifizierung der Sammeleffizienz sowie der Änderung des Anteils der ZPL-Photonen an der Gesamtemission die Abschätzung der durch das Abstimmen der Mode hervorgerufenen Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnis. Erfolgt die optische Spinauslese anhand der in einem schmalen Filterfenster um die NV-ZPL detektierten Photonen, so kann eine nahezu Verdreifachung des SNR erzielt werden.

Die erzielte SNR-Erhöhung wird zum einen durch die vorliegende Emitter-Resonator-Kopplung limitiert, eine optimale Kopplung hätte durch das Abstimmen der Mode auf die NV-ZPL sogar Steigerungsfaktoren des Signal-Rausch-Verhältnis von bis zu 6,2 zur Folge. Da wie in dieser Arbeit gezeigt werden konnte primär die Eigenschaften der NV-Zentren wie die Halbwertsbreite der Nullphononenlinie oder auch die Quanteneffizienz den generalisierten Purcell-Faktor beeinflussen sowie darüber hinaus die laterale und vertikale Positionierung sowie die relative Orientierung der Emissionsdipole der NV-Zentren zum Modenfeld entscheidende Limitierungen darstellen, sollte zur Erhöhung des SNR bei der optischen Spinauslese in Zukunft daran gearbeitet werden, qualitativ bessere NV-Zentren zu koppeln und darüber hinaus die Orientierung und Positionierung der Emitter relativ zum vorliegenden Modenfeld zu verbessern.

Hierzu könnte in Zukunft die Herstellungsreihenfolge derart variiert werden, dass in einer Dia-

mantmembran erzeugte Emitter zunächst optisch charakterisiert und erst im Anschluss daran die photonischen Kristallstrukturen um geeignete Farbzentren herum gefertigt werden, wie zumindest für SiV-Zentren bereits erfolgreich demonstriert wurde [237]. Im Gegensatz zur zielgenauen Implantation der Stickstoffionen durch eine AFM-Spitze in bereits hergestellte Strukturen, die lediglich bei geringen Implantationsenergien möglich ist und somit nur geringe Implantationstiefen von bis zu wenigen zehn Nanometern erlaubt, könnten die Stickstoffionen bei diesem Ansatz mit höheren Energien implantiert und NV-Zentren somit auch vertikal im Bereich der Feldmaxima potenzieller Resonatormoden erzeugt werden. Bei hierzu erforderlichen Implantationenergien von etwa 85 keV konnten darüber hinaus NV-Zentren mit ZPL-Halbwertsbreiten von 28 MHz und somit in der Größenordnung der natürlichen Linienbreite implantiert werden [268], wohingegen für oberflächennah erzeugte Emitter lediglich Halbwertsbreiten bis hinunter zu 10 GHz gemessen wurden [284]. Des Weiteren versprechen derart tief implantierte Emitter eine größere Photostabilität sowie eine gesteigerte Quanteneffizienz. Die Variation der Herstellungsreihenfolge hätte ferner den Vorteil, dass nach erfolgter Charakterisierung sogar ein einzelnes NV-Zentrum gezielt ausgewählt und ein Resonator um den Emitter gefertigt werden könnte. Bei der nachträglichen Implantation kann aufgrund des stochastischen Charakters der Erzeugung der NV-Zentren hingegen selbst bei schrittweiser Reduktion der Dosen ein einzelner Emitter im Resonator nicht garantiert werden. In Zukunft könnten ferner Diamantproben mit (111)-Ebene als Oberfläche statt der herkömmlichen und auch hier verwendeten (001)-Proben eingesetzt werden. Dadurch könnte der Purcell-Faktor bei einer Emitter-Resonator-Kopplung und somit auch der SNR bei der optischen Spinauslese noch weiter gesteigert werden, da in einer derartigen Probe geeignete NV-Dipole mit einer für die Kopplung optimalen Orientierung vorliegen.

Hierbei ist jedoch noch zu berücksichtigen, dass bei der Implantation von Stickstoffionen durch eine strukturierte AFM-Spitze eine laterale Auflösung der erzeugten NV-Zentren relativ zum Feldmaximum einer Resonatormode von bis zu 20 nm erreicht werden kann [271], wohingegen eine laterale Positioniergenauigkeit in dieser Größenordnung bei nachträglicher Herstellung eines Resonators um ein bestehendes NV-Zentrum zumindest nach heutigem Stand nicht möglich ist. Sollte jedoch zukünftig die laterale Positionierbarkeit der nachträglich um ein bestehendes Farbzentrum herum hergestellten Nanostrukturen verbessert werden können, so würde dieser Zugang aufgrund der potenziell geeigneteren NV-Zentren mit kleineren Halbwertsbreiten und besserer Quanteneffizienz sowie aufgrund einer potenziell besseren vertikalen Positionierung der Emitter relativ zum Modenfeld eine bessere Emitter-Resonator-Kopplung und somit eine stärkere SNR-Erhöhung bei Abstimmen einer Mode auf die NV-ZPL versprechen als die Anwendung von Nanoimplantationstechniken. Andererseits könnten aber auch die dargelegten Limitierungen der hochauflösenden Implantationstechniken in Zukunft noch umgangen werden, so wurden etwa in den vergangenen Jahren vielversprechende Fortschritte bei der FIB-Implantation von Emittern gemacht. Zumindest für Siliziumionen konnte der Strahldurchmesser des fokussierten Ionenstrahls auf unter 40 nm reduziert und Siliziumionen bei einer lateralen Auflösung von unter 50 nm mit Energien von 100 keV auch vertikal in Bereichen des Feldmaximums der Moden eines photonischen Kristallresonators implantiert werden [309].

Des Weiteren ist die hier erzielte SNR-Erhöhung durch die vorliegende Sammeleffizienz limitiert.

Die Sammeleffizienz könnte etwa in Zukunft verbessert werden, indem das bereits in dieser Arbeit beschriebene optimierte Probensystem mit einem zusätzlich unterhalb der Diamantmembran angebrachten Goldspiegel genutzt wird. Hierdurch könnte die Sammeleffizienz etwa verdoppelt und der SNR folglich um einen weiteren Faktor $\sqrt{2}$ gesteigert werden. Auch Übergitter, die in den photonischen Kristallstrukturen etwa durch periodische Variation der Lochradien mit doppelter Gitterkonstante erzeugt werden, sind in Zukunft eine Option zur Steigerung der Sammeleffizienz [261–263, 265]. Die Sammeleffizienz könnte dadurch nahezu vervierfacht werden [263]. Allerdings ist hinsichtlich einer angestrebten SNR-Erhöhung hierbei zu beachten, dass eine Optimierung der Sammeleffizienz durch ein Übergitter prinzipiell mit einer Reduzierung des Gütefaktors der Moden einhergeht. Eine verbesserte Auskopplung ohne Reduktion der Gütefaktoren könnte alternativ gelingen, wenn die NV-Zentren in eindimensionale photonische Kristallstrukturen eingebracht werden, die an einem Ende gezielt verjüngt werden und so die direkte Einkopplung des Lichts in eine ebenfalls verjüngte optische Faser ermöglichen. Für die Diamant/Faser-Kopplung konnte bereits eine Effizienz von über 90 % erzielt werden [310]. Diese Technik wurde zumindest für SiV-Zentren [310] und auch für Quantenpunkte [311] bereits erfolgreich umgesetzt.

Literaturverzeichnis

- [1] G. Boole. *The Mathematical Analysis of Logic*. Philisophical Library Inc, 1847.
- [2] G. E. Moore. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics*, **38**, 114, 1965.
- [3] M. M. Waldrop. The chips are down for Moore's law. *Nature*, **530**, 144–147, 2016.
- [4] T. N. Theis und H.-S. P. Wong. The End of Moore's Law: A New Beginning for Information Technology. *Computing in Science & Engineering*, **19**, 41–50, 2017.
- [5] D. Deutsch und R. Penrose. Quantum theory, the Church-Turing principle and the universal quantum computer. *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences*, **400**, 97–117, 1985.
- [6] L. K. Grover. A Fast Quantum Mechanical Algorithm for Database Search. In *Proceedings of the Twenty-eighth Annual ACM Symposium on Theory of Computing*, Seiten 212–219. ACM, New York, NY, USA, 1996.
- [7] P. Shor. Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer. *SIAM Journal on Computing*, **26**, 1484–1509, 1997.
- [8] N. Gisin und R. Thew. Quantum communication. *Nature Photonics*, **1**, 165–171, 2007.
- [9] C. Bennett und G. Brassard. Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing. In *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing*, Band 560, Seiten 175–179. 1984.
- [10] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat und P. Grangier. Single Photon Quantum Cryptography. *Physical Review Letters*, **89**, 187901, 2002.
- [11] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat und P. Grangier. Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source. *New Journal of Physics*, **6**, 92, 2004.
- [12] J. Yin, Y. Cao, Y.-H. Li, S.-K. Liao, L. Zhang, J.-G. Ren, W.-Q. Cai, W.-Y. Liu, B. Li, H. Dai, G.-B. Li, Q.-M. Lu, Y.-H. Gong, Y. Xu, S.-L. Li, F.-Z. Li, Y.-Y. Yin, Z.-Q. Jiang, M. Li, J.-J. Jia, G. Ren, D. He, Y.-L. Zhou, X.-X. Zhang, N. Wang, X. Chang, Z.-C. Zhu, N.-L. Liu, Y.-A. Chen, C.-Y. Lu, R. Shu, C.-Z. Peng, J.-Y. Wang und J.-W. Pan. Satellite-based entanglement distribution over 1200 kilometers. *Science*, **356**, 1140–1144, 2017.

- [13] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe und J. L. O'Brien. Quantum computers. *Nature*, **464**, 45–53, 2010.
- [14] H. J. Kimble. The quantum internet. *Nature*, **453**, 1023–1030, 2008.
- [15] S. Wehner, D. Elkouss und R. Hanson. Quantum internet: A vision for the road ahead. *Science*, **362**, eaam9288, 2018.
- [16] D. P. DiVincenzo. The Physical Implementation of Quantum Computation. *Fortschritte der Physik*, **48**, 771–783, 2000.
- [17] D. P. DiVincenzo. Two-bit gates are universal for quantum computation. *Physical Review A*, **51**, 1015–1022, 1995.
- [18] A. Barenco, C. H. Bennett, R. Cleve, D. P. DiVincenzo, N. Margolus, P. Shor, T. Sleator, J. A. Smolin und H. Weinfurter. Elementary gates for quantum computation. *Physical Review A*, **52**, 3457–3467, 1995.
- [19] M. Atatüre, J. Dreiser, A. Badolator, A. Högele, K. Karrai und A. Imamoglu. Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity. *Science*, **312**, 551–553, 2006.
- [20] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang und Y. Yamamoto. Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses. *Nature*, **456**, 218–221, 2008.
- [21] C. Hepp, T. Müller, V. Waselowski, J. N. Becker, B. Pingault, H. Sternschulte, D. Steinmüller-Nethl, A. Gali, J. R. Maze, M. Atatüre und C. Becher. Electronic Structure of the Silicon Vacancy Color Center in Diamond. *Physical Review Letters*, **112**, 036405, 2014.
- [22] J. N. Becker, J. Görlitz, C. Arendt, M. Markham und C. Becher. Ultrafast all-optical coherent control of single silicon vacancy colour centres in diamond. *Nature Communications*, **6**, 13512, 2016.
- [23] B. Pingault, D.-D. Jarausch, C. Hepp, L. Klintberg, J. N. Becker, M. Markham, C. Becher und M. Atatüre. Coherent control of the silicon-vacancy spin in diamond. *Nature Communications*, **8**, 15579, 2017.
- [24] M. V. G. Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer und M. D. Lukin. Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond. *Science*, **316**, 1312–1316, 2007.
- [25] P. Neumann, N. Mizuochi, F. Rempp, P. Hemmer, H. Watanabe, S. Yamasaki, V. Jacques, T. Gaebel, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Multipartite Entanglement Among Single Spins in Diamond. *Science*, **320**, 1326–1329, 2008.
- [26] P. Neumann, R. Kolesov, B. Naydenov, J. Beck, F. Rempp, M. Steiner, V. Jacques, G. Balasubramanian, M. L. Markham, D. J. Twitchen, S. Pezzagna, J. Meijer, J. Twamley,

- F. Jelezko und J. Wrachtrup. Quantum register based on coupled electron spins in a room-temperature solid. *Nature Physics*, **6**, 249–253, 2010.
- [27] C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, W. M. Itano und D. J. Wineland. Demonstration of a Fundamental Quantum Logic Gate. *Physical Review Letters*, **75**, 4714–4717, 1995.
- [28] J. I. Cirac und P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Physical Review Letters*, **74**, 4091–4094, 1995.
- [29] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. F. Roos, J. Eschner und R. Blatt. Realization of the Cirac–Zoller controlled-NOT quantum gate. *Nature*, **422**, 408–411, 2003.
- [30] D. L. Moehring, P. Maunz, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, L.-M. Duan und C. Monroe. Entanglement of single-atom quantum bits at a distance. *Nature*, **449**, 68–71, 2007.
- [31] R. Blatt und D. Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, **453**, 1008–1015, 2008.
- [32] L. DiCarlo, J. M. Chow, J. M. Gambetta, L. S. Bishop, B. R. Johnson, D. I. Schuster, J. Majer, A. Blais, L. Frunzio, S. M. Girvin und R. J. Schoelkopf. Demonstration of two-qubit algorithms with a superconducting quantum processor. *Nature*, **460**, 240–244, 2009.
- [33] C. Negrevergne, T. S. Mahesh, C. A. Ryan, M. Ditty, F. Cyr-Racine, W. Power, N. Boulant, T. Havel, D. G. Cory und R. Laflamme. Benchmarking Quantum Control Methods on a 12-Qubit System. *Physical Review Letters*, **96**, 170501, 2006.
- [34] N. M. Linke, D. Maslov, M. Roetteler, S. Debnath, C. Figgatt, K. A. Landsman, K. Wright und C. Monroe. Experimental comparison of two quantum computing architectures. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **114**, 3305–3310, 2017.
- [35] S. P. Lawrence und R. K. Don. *Diamond: Electronic Properties and Applications*. Springer, Boston, MA, 1995.
- [36] T. R. Anthony, W. F. Banholzer, J. F. Fleischer, L. Wei, P. K. Kuo, R. L. Thomas und R. W. Pryor. Thermal diffusivity of isotopically enriched ^{12}C diamond. *Physical Review B*, **42**, 1104–1111, 1990.
- [37] K. Nakamura, S. Yamashita, T. Tojo, M. Mitsuishi, K. Kataoka und M. Yoshimoto. Single-crystal synthesis of highly thermal conductive ^{12}C -enriched diamond from pyrolytic carbon powder by the high-pressure, high-temperature method. *Diamond and Related Materials*, **16**, 1765 – 1769, 2007.
- [38] D. M. Toyli, C. D. Weis, G. D. Fuchs, T. Schenkel und D. D. Awschalom. Chip-Scale Nanofabrication of Single Spins and Spin Arrays in Diamond. *Nano Letters*, **10**, 3168–3172, 2010.

- [39] S. Pezzagna, D. Wildanger, P. Mazarov, A. D. Wieck, Y. Sarov, I. Rangeow, B. Naydenov, F. Jelezko, S. W. Hell und J. Meijer. Nanoscale Engineering and Optical Addressing of Single Spins in Diamond. *Small*, **6**, 2117–2121, 2010.
- [40] S. Pezzagna, D. Rogalla, H.-W. Becker, I. Jakobi, F. Dolde, B. Naydenov, J. Wrachtrup, F. Jelezko, C. Trautmann und J. Meijer. Creation of colour centres in diamond by collimated ion-implantation through nano-channels in mica. *physica status solidi (a)*, **208**, 2017–2022, 2011.
- [41] M. Lesik, P. Spinicelli, S. Pezzagna, P. Happel, V. Jacques, O. Salord, B. Rasser, A. Delobbe, P. Sudraud, A. Tallaire, J. Meijer und J.-F. Roch. Maskless and targeted creation of arrays of colour centres in diamond using focused ion beam technology. *physica status solidi (a)*, **210**, 2055–2059, 2013.
- [42] I. Bayn, E. H. Chen, M. E. Trusheim, L. Li, T. Schröder, O. Gaathon, M. Lu, A. Stein, M. Liu, K. Kisslinger, H. Clevenson und D. Englund. Generation of Ensembles of Individually Resolvable Nitrogen Vacancies Using Nanometer-Scale Apertures in Ultrahigh-Aspect Ratio Planar Implantation Masks. *Nano Letters*, **15**, 1751–1758, 2015.
- [43] A. D. Greentree, P. Olivero, M. Draganski, E. Trajkov, J. R. Rabeau, P. Reichart, B. C. Gibson, S. Rubanov, S. T. Huntington, D. N. Jamieson und S. Prawer. Critical components for diamond-based quantum coherent devices. *Journal of Physics-Condensed Matter*, **18**, 825–842, 2006.
- [44] K. Nemoto, M. Trupke, S. J. Devitt, A. M. Stephens, B. Scharfenberger, K. Buczak, T. Nöbauer, M. S. Everitt, J. Schmiedmayer und W. J. Munro. Photonic Architecture for Scalable Quantum Information Processing in Diamond. *Physical Review X*, **4**, 031022, 2014.
- [45] T. Schröder, S. L. Mouradian, J. Zheng, M. E. Trusheim, M. Walsh, E. H. Chen, L. Li, I. Bayn und D. Englund. Quantum nanophotonics in diamond. *Journal of the Optical Society of America B*, **33**, 65–83, 2016.
- [46] G. Davies und M. F. Hamer. Optical studies of the 1.945 eV vibronic band in diamond. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **348**, 285–298, 1976.
- [47] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda und H. Weinfurter. Stable solid-state source of single photons. *Physical Review Letters*, **85**, 290–293, 2000.
- [48] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney und L. C. L. Hollenberg. The negatively charged nitrogen-vacancy centre in diamond: the electronic solution. *New Journal of Physics*, **13**, 025019, 2011.
- [49] J. H. N. Loubser und J. A. van Wyk. Electron spin resonance in the study of diamond. *Reports on Progress in Physics*, **41**, 1201, 1978.

- [50] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber und J. Wrachtrup. Observation of Coherent Oscillations in a Single Electron Spin. *Physical Review Letters*, **92**, 076401, 2004.
- [51] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup und C. v. Borczyskowski. Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers. *Science*, **276**, 2012–2014, 1997.
- [52] L. Robledo, H. Bernien, T. van der Sar und R. Hanson. Spin dynamics in the optical cycle of single nitrogen-vacancy centres in diamond. *New Journal of Physics*, **13**, 025013, 2011.
- [53] L. Robledo, L. Childress, H. Bernien, B. Hensen, P. Alkemade und R. Hanson. High-fidelity projective read-out of a solid-state spin quantum register. *Nature*, **477**, 574–578, 2011.
- [54] A. Dréau, M. Lesik, L. Rondin, P. Spinicelli, O. Arcizet, J.-F. Roch und V. Jacques. Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity. *Physical Review B*, **84**, 195204, 2011.
- [55] G. Balasubramanian, I. Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P. R. Hemmer, A. Krüger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions. *Nature*, **455**, 648–651, 2008.
- [56] G. D. Fuchs, V. V. Dobrovitski, R. Hanson, A. Batra, C. D. Weis, T. Schenkel und D. D. Awschalom. Excited-State Spectroscopy Using Single Spin Manipulation in Diamond. *Physical Review Letters*, **101**, 117601, 2008.
- [57] J. Maze, P. Stanwix, J. Hodges, S. Hong, J. Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M. Dutt, E. Togan, A. Zibrov, A. Yacoby, R. Walsworth und M. Lukin. Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond. *Nature*, **455**, 644–647, 2008.
- [58] T. Wolf, P. Neumann, K. Nakamura, H. Sumiya, T. Ohshima, J. Isoya und J. Wrachtrup. Subpicotesla Diamond Magnetometry. *Physical Review X*, **5**, 041001, 2015.
- [59] F. Shi, X. Rong, N. Xu, Y. Wang, J. Wu, B. Chong, X. Peng, J. Kniepert, R.-S. Schoenfeld, W. Harneit, M. Feng und J. Du. Room-Temperature Implementation of the Deutsch-Jozsa Algorithm with a Single Electronic Spin in Diamond. *Physical Review Letters*, **105**, 040504, 2010.
- [60] G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tisler, V. Jacques, P. R. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. *Nature Materials*, **8**, 383–387, 2009.
- [61] K. D. Jahnke, B. Naydenov, T. Teraji, S. Koizumi, T. Umeda, J. Isoya und F. Jelezko. Long coherence time of spin qubits in ^{12}C enriched polycrystalline chemical vapor deposition diamond. *Applied Physics Letters*, **101**, 012405, 2012.

- [62] N. Bar-Gill, L. Pham, A. Jarmola, D. Budker und R. Walsworth. Solid-state electronic spin coherence time approaching one second. *Nature Communications*, **4**, 1743, 2013.
- [63] M. H. Abobeih, J. Cramer, M. A. Bakker, N. Kalb, M. Markham, D. J. Twitchen und T. H. Taminiau. One-second coherence for a single electron spin coupled to a multi-qubit nuclear-spin environment. *Nature Communications*, **9**, 2552, 2018.
- [64] G. D. Fuchs, V. V. Dobrovitski, D. M. Toyli, F. J. Heremans und D. D. Awschalom. Gigahertz Dynamics of a Strongly Driven Single Quantum Spin. *Science*, **326**, 1520–1522, 2009.
- [65] G. D. Fuchs, G. Burkard, P. V. Klimov und D. D. Awschalom. A quantum memory intrinsic to single nitrogen–vacancy centres in diamond. *Nature Physics*, **7**, 789, 2011.
- [66] P. Neumann, J. Beck, M. Steiner, F. Rempp, H. Fedder, P. R. Hemmer, J. Wrachtrup und F. Jelezko. Single-Shot Readout of a Single Nuclear Spin. *Science*, **329**, 542–544, 2010.
- [67] F. Dolde, I. Jakobi, B. Naydenov, N. Zhao, S. Pezzagna, C. Trautmann, J. Meijer, P. Neumann, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Room-temperature entanglement between single defect spins in diamond. *Nature Physics*, **9**, 139, 2013.
- [68] E. Togan, Y. Chu, A. S. Trifonov, L. Jiang, J. Maze, L. Childress, M. V. G. Dutt, A. S. Sorensen, P. R. Hemmer, A. S. Zibrov und M. D. Lukin. Quantum entanglement between an optical photon and a solid-state spin qubit. *Nature*, **466**, 730, 2010.
- [69] H. Bernien, L. Childress, L. Robledo, M. Markham, D. Twitchen und R. Hanson. Two-Photon Quantum Interference from Separate Nitrogen Vacancy Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **108**, 043604, 2012.
- [70] A. Sipahigil, M. L. Goldman, E. Togan, Y. Chu, M. Markham, D. J. Twitchen, A. S. Zibrov, A. Kubanek und M. D. Lukin. Quantum Interference of Single Photons from Remote Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **108**, 143601, 2012.
- [71] H. Bernien, B. Hensen, W. Pfaff, G. Koolstra, M. S. Blok, L. Robledo, T. H. Taminiau, M. Markham, D. J. Twitchen, L. Childress und R. Hanson. Heralded entanglement between solid-state qubits separated by three metres. *Nature*, **497**, 86–90, 2013.
- [72] B. Hensen, H. Bernien, A. E. Dréau, A. Reiserer, N. Kalb, M. S. Blok, J. Ruitenbergh, R. F. L. Vermeulen, R. N. Schouten, C. Abellán, W. Amaya, V. Pruneri, M. W. Mitchell, M. Markham, D. J. Twitchen, D. Elkouss, S. Wehner, T. H. Taminiau und R. Hanson. Loophole-free Bell inequality violation using electron spins separated by 1.3 kilometres. *Nature*, **526**, 682–686, 2015.
- [73] D. D. Awschalom, R. Hanson, J. Wrachtrup und B. B. Zhou. Quantum technologies with optically interfaced solid-state spins. *Nature Photonics*, **12**, 516–527, 2018.

- [74] J. I. Cirac, P. Zoller, H. J. Kimble und H. Mabuchi. Quantum State Transfer and Entanglement Distribution among Distant Nodes in a Quantum Network. *Physical Review Letters*, **78**, 3221–3224, 1997.
- [75] S. Ritter, C. Nölleke, C. Hahn, A. Reiserer, A. Neuzner, M. Uphoff, M. Mücke, E. Figueroa, J. Bochmann und G. Rempe. An elementary quantum network of single atoms in optical cavities. *Nature*, **484**, 195–200, 2012.
- [76] E. M. Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. *Physical Review*, **69**, 681, 1946.
- [77] S. A. Wolf, I. Rosenberg, R. Rapaport und N. Bar-Gill. Purcell-enhanced optical spin readout of nitrogen-vacancy centers in diamond. *Physical Review B*, **92**, 235410, 2015.
- [78] S. Bogdanov, M. Y. Shalaginov, A. Akimov, A. S. Lagutchev, P. Kapitanova, J. Liu, D. Woods, M. Ferrera, P. Belov, J. Irudayaraj, A. Boltasseva und V. M. Shalaev. Electron spin contrast of Purcell-enhanced nitrogen-vacancy ensembles in nanodiamonds. *Physical Review B*, **96**, 035146, 2017.
- [79] A. Faraon, P. E. Barclay, C. Santori, K.-M. C. Fu und R. G. Beausoleil. Resonant enhancement of the zero-phonon emission from a colour centre in a diamond cavity. *Nature Photonics*, **5**, 301–305, 2011.
- [80] B. J. M. Hausmann, B. Shields, Q. Quan, P. Maletinsky, M. McCutcheon, J. T. Choy, T. M. Babinec, A. Kubanek, A. Yacoby, M. D. Lukin und M. Loncar. Integrated Diamond Networks for Quantum Nanophotonics. *Nano Letters*, **12**, 1578–1582, 2012.
- [81] A. Faraon, C. Santori, Z. Huang, V. M. Acosta und R. G. Beausoleil. Coupling of Nitrogen-Vacancy Centers to Photonic Crystal Cavities in Monocrystalline Diamond. *Physical Review Letters*, **109**, 033604, 2012.
- [82] B. J. M. Hausmann, B. J. Shields, Q. Quan, Y. Chu, N. P. de Leon, R. Evans, M. J. Burek, A. S. Zibrov, M. Markham, D. J. Twitchen, H. Park, M. D. Lukin und M. Loncar. Coupling of NV Centers to Photonic Crystal Nanobeams in Diamond. *Nano Letters*, **13**, 5791–5796, 2013.
- [83] L. Li, T. Schröder, E. H. Chen, M. Walsh, I. Bayn, J. Goldstein, O. Gaathon, M. E. Trusheim, M. Lu, J. Mower, M. Cotlet, M. L. Markham, D. J. Twitchen und D. Englund. Coherent spin control of a nanocavity-enhanced qubit in diamond. *Nature Communications*, **6**, 6173, 2015.
- [84] J. Riedrich-Möller, S. Pezzagna, J. Meijer, C. Pauly, F. Mücklich, M. Markham, A. M. Edmonds und C. Becher. Nanoimplantation and Purcell enhancement of single nitrogen-vacancy centers in photonic crystal cavities in diamond. *Applied Physics Letters*, **106**, 221103, 2015.

- [85] T. Schröder, M. Walsh, J. Zheng, S. Mouradian, L. Li, G. Malladi, H. Bakhru, M. Lu, A. Stein, M. Heuck und D. Englund. Scalable fabrication of coupled NV center - photonic crystal cavity systems by self-aligned N ion implantation. *Optics Materials Express*, **7**, 1514–1524, 2017.
- [86] M. Schukraft, J. Zheng, T. Schröder, S. L. Mouradian, M. Walsh, M. E. Trusheim, H. Bakhru und D. R. Englund. Invited Article: Precision nanoimplantation of nitrogen vacancy centers into diamond photonic crystal cavities and waveguides. *APL Photonics*, **1**, 020801, 2016.
- [87] J. Riedrich-Möller, E. Neu und C. Becher. Design of microcavities in diamond-based photonic crystals by Fourier- and real-space analysis of cavity fields. *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications*, **8**, 150–162, 2010.
- [88] J. Riedrich-Möller, L. Kipfstuhl, C. Hepp, E. Neu, C. Pauly, F. Mücklich, A. Baur, M. Wandt, S. Wolff, M. Fischer, S. Gsell, M. Schreck und C. Becher. One- and two-dimensional photonic crystal microcavities in single crystal diamond. *Nature Nanotechnology*, **7**, 69–74, 2012.
- [89] J. Riedrich-Möller. *Deterministic coupling of single color centers to monolithic photonic crystal cavities in single crystal diamond*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2014.
- [90] T. Jung. *Simulation, Herstellung und Untersuchung von optischen Resonatoren in zweidimensionalen photonischen Kristallen in Diamant*. Wissenschaftliche Arbeit (Lehramt für Gymnasien), Universität des Saarlandes, 2011.
- [91] W. H. Bragg und W. L. Bragg. The structure of the diamond. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **89**, 277–291, 1913.
- [92] D. Tabor. Mohs's Hardness Scale - A Physical Interpretation. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, **67**, 249, 1954.
- [93] E. L. Simons und P. Cannon. A means of increasing the oxidation resistance of diamond. *Nature*, **210**, 90–91, 1966.
- [94] F. S. Phinney. Graphitization of diamonds. *Science*, **120**, 393–394, 1954.
- [95] M. Seal. Graphitization and plastic deformation of diamond. *Nature*, **182**, 1264–1266, 1958.
- [96] A. M. Zaitsev. *Optical Properties of Diamond: A Data Handbook*. Erste Auflage. Springer, Berlin, 2001.
- [97] H. Clevenson, M. E. Trusheim, T. Schröder, C. Teale, D. Braje und D. Englund. Broadband Magnetometry and Temperature Sensing with a Light Trapping Diamond Waveguide. *Nature Physics*, **11**, 393–397, 2014.

- [98] J. P. Hadden, J. P. Harrison, A. C. Stanley-Clarke, L. Marseglia, Y.-L. D. Ho, B. R. Patton, J. L. O'Brien und J. G. Rarity. Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses. *Applied Physics Letters*, **97**, 241901, 2010.
- [99] P. Maletinsky, S. Hong, M. S. Grinolds, B. Hausmann, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, M. Loncar und A. Yacoby. A robust scanning diamond sensor for nanoscale imaging with single nitrogen-vacancy centres. *Nature Nanotechnology*, **7**, 320–324, 2012.
- [100] P. Appel, E. Neu, M. Ganzhorn, A. Barfuss, M. Batzer, M. Gratz, A. Tschöpe und P. Maletinsky. Fabrication of all diamond scanning probes for nanoscale magnetometry. *Review of Scientific Instruments*, **87**, 063703, 2016.
- [101] R. Balmer, J. R. Brandon, S. L. Clewes, H. Dhillon, J. Dodson, I. Friel, P. N. Inglis, T. D. Madgwick, M. Markham, T. Mollart, N. Perkins, G. A. Scarsbrook, D. Twitchen, A. J. Whitehead, J. J. Wilman und S. M. Woollard. Chemical vapour deposition synthetic diamond: Materials, technology and applications. *Journal of Physics Condensed Matter*, **21**, 364221, 2009.
- [102] G. E. Harlow. *The Nature of Diamonds*. Cambridge University Press, 1998.
- [103] Y. Vlasov, W. M. J. Green und F. Xia. High-throughput silicon nanophotonic wavelength-insensitive switch for on-chip optical networks. *Nature Photonics*, **2**, 242–246, 2008.
- [104] R. M. Hazen. *The Diamond Makers*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [105] F. P. Bundy, H. T. Hall, H. M. Strong und R. H. Webtorf. Man-made diamonds. *Nature*, **176**, 51–55, 1955.
- [106] H. Sumiya und S. Satoh. High-pressure synthesis of high-purity diamond crystal. *Diamond & Related Materials*, **5**, 1359 – 1365, 1996.
- [107] T. Teraji. Chemical vapor deposition of homoepitaxial diamond films. *physica status solidi (a)*, **203**, 3324–3357, 2006.
- [108] M. Schreck, F. Hörmann, H. Roll, J. K. N. Lindner und B. Stritzker. Diamond nucleation on iridium buffer layers and subsequent textured growth: A route for the realization of single-crystal diamond films. *Applied Physics Letters*, **78**, 192–194, 2001.
- [109] M. Schreck, A. Schury, F. Hörmann, H. Roll und B. Stritzker. Mosaicity reduction during growth of heteroepitaxial diamond films on iridium buffer layers: Experimental results and numerical simulations. *Journal of Applied Physics*, **91**, 676–685, 2002.
- [110] M. Schreck, S. Gsell, R. Brescia, M. Fischer, R. Bernhard, P. Prunici, P. Hess und B. Stritzker. Diamond nucleation on iridium: Local variations of structure and density within the BEN layer. *Diamond & Related Materials*, **18**, 107–112, 2009.

- [111] M. Schreck, S. Gsell, R. Brescia und M. Fischer. Ion bombardment induced buried lateral growth: the key mechanism for the synthesis of single crystal diamond wafers. *Scientific Reports*, **7**, 44462, 2017.
- [112] C. M. Breeding und J. Shigley. The "Type" Classification System of Diamonds and Its Importance in Gemology. *Gems and Gemology*, **45**, 96–111, 2009.
- [113] R. Robertson, J. J. Fox und A. E. Martin. Two types of diamond. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **232**, 463–535, 1933.
- [114] W. Kaiser und W. L. Bond. Nitrogen, A Major Impurity in Common Type I Diamond. *Physical Review*, **115**, 857–863, 1959.
- [115] I. Aharonovich und E. Neu. Diamond Nanophotonics. *Advanced Optical Materials*, **2**, 911–928, 2014.
- [116] S. Praver und I. Aharonovich (Herausgeber). *Quantum Information Processing with Diamond*. Woodhead Publishing, 2014.
- [117] I. Aharonovich, D. Englund und M. Toth. Solid-state single-photon emitters. *Nature Photonics*, **10**, 631–641, 2016.
- [118] C. Clark und C. Dickerson. The 1.681 eV centre in polycrystalline diamond. *Surface and Coatings Technology*, **47**, 336 – 343, 1991.
- [119] J. P. Goss, P. R. Briddon und M. J. Shaw. Density functional simulations of silicon-containing point defects in diamond. *Physical Review B*, **76**, 075204, 2007.
- [120] E. Neu, D. Steinmetz, J. Riedrich-Möller, S. Gsell, M. Fischer, M. Schreck und C. Becher. Single photon emission from silicon-vacancy colour centres in chemical vapour deposition nano-diamonds on iridium. *New Journal of Physics*, **13**, 025012, 2011.
- [121] C. L. Wang, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter und B. Burchard. Single photon emission from SiV centres in diamond produced by ion implantation. *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics*, **39**, 37–41, 2006.
- [122] E. Neu, M. Fischer, S. Gsell, M. Schreck und C. Becher. Fluorescence and polarization spectroscopy of single silicon vacancy centers in heteroepitaxial nanodiamonds on iridium. *Physical Review B*, **84**, 205211, 2011.
- [123] E. Neu. *Silicon vacancy color centers in chemical vapor deposition diamond: New insights into promising solid state single photon sources*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2012.
- [124] S. Lindner, A. Bommer, A. Muzha, A. Krueger, L. Gines, S. Mandal, O. Williams, E. Londero, A. Gali und C. Becher. Strongly inhomogeneous distribution of spectral properties of silicon-vacancy color centers in nanodiamonds. *New Journal of Physics*, **20**, 115002, 2018.

- [125] A. Dietrich, K. D. Jahnke, J. M. Binder, T. Teraji, J. Isoya, L. J. Rogers und F. Jelezko. Isotopically varying spectral features of silicon-vacancy in diamond. *New Journal of Physics*, **16**, 113019, 2014.
- [126] L. Rogers, K. Jahnke, T. Teraji, L. Marseglia, C. Müller, B. Naydenov, H. Schauffert, C. Kranz, J. Isoya, L. McGuinness und F. Jelezko. Multiple intrinsically identical single-photon emitters in the solid state. *Nature Communications*, **5**, 4739, 2014.
- [127] E. Neu, M. Agio und C. Becher. Photophysics of single silicon vacancy centers in diamond: implications for single photon emission. *Optics Express*, **20**, 19956–19971, 2012.
- [128] C. D. Clark, H. Kanda, I. Kiflawi und G. Sittas. Silicon defects in diamond. *Physical Review B*, **51**, 16681–16688, 1995.
- [129] H. Sternschulte, K. Thonke, R. Sauer, P. C. Münzinger und P. Michler. 1.681 eV luminescence center in chemical-vapor-deposited homoepitaxial diamond films. *Physical Review B*, **50**, 14554–14560, 1994.
- [130] J. N. Becker. *Silicon Vacancy Colour Centres in Diamond: Coherence Properties & Quantum Control*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2017.
- [131] L. J. Rogers, K. D. Jahnke, M. H. Metsch, A. Sipahigil, J. M. Binder, T. Teraji, H. Sumiya, J. Isoya, M. D. Lukin, P. Hemmer und F. Jelezko. All-Optical Initialization, Readout, and Coherent Preparation of Single Silicon-Vacancy Spins in Diamond. *Physical Review Letters*, **113**, 263602, 2014.
- [132] L. J. Rogers, K. D. Jahnke, M. W. Doherty, A. Dietrich, L. P. McGuinness, C. Mueller, T. Teraji, H. Sumiya, J. Isoya, N. B. Manson und F. Jelezko. Electronic structure of the negatively charged silicon-vacancy center in diamond. *Physical Review B*, **89**, 235101, 2014.
- [133] T. Müller, C. Hepp, B. Pingault, E. Neu, S. C. Gsell, M. Schreck, H. Sternschulte, D. Steinmueller-Nethl, C. Becher und M. Atatüre. Optical signatures of silicon-vacancy spins in diamond. *Nature Communications*, **5**, 3328, 2014.
- [134] J. N. Becker und C. Becher. Coherence Properties and Quantum Control of Silicon Vacancy Color Centers in Diamond. *physica status solidi (a)*, **214**, 1770170, 2017.
- [135] J. N. Becker, B. Pingault, D. Groß, M. Gündoğan, N. Kukharchyk, M. Markham, A. Edmonds, M. Atatüre, P. Bushev und C. Becher. All-Optical Control of the Silicon-Vacancy Spin in Diamond at Millikelvin Temperatures. *Physical Review Letters*, **120**, 053603, 2018.
- [136] B. Pingault, J. N. Becker, C. H. H. Schulte, C. Arend, C. Hepp, T. Godde, A. I. Tartakovskii, M. Markham, C. Becher und M. Atatüre. All-Optical Formation of Coherent Dark States of Silicon-Vacancy Spins in Diamond. *Physical Review Letters*, **113**, 263601, 2014.
- [137] D. D. Sukachev, A. Sipahigil, C. T. Nguyen, M. K. Bhaskar, R. E. Evans, F. Jelezko und M. D. Lukin. Silicon-Vacancy Spin Qubit in Diamond: A Quantum Memory Exceeding 10 ms with Single-Shot State Readout. *Physical Review Letters*, **119**, 223602, 2017.

- [138] U. F. S. D’Haenens-Johansson, A. M. Edmonds, B. L. Green, M. E. Newton, G. Davies, P. M. Martineau, R. U. A. Khan und D. J. Twitchen. Optical properties of the neutral silicon split-vacancy center in diamond. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, **84**, 245208, 2011.
- [139] T. Iwasaki, F. Ishibashi, Y. Miyamoto, Y. Doi, S. Kobayashi, T. Miyazaki, K. Tahara, K. D. Jahnke, L. J. Rogers, B. Naydenov, F. Jelezko, S. Yamasaki, S. Nagamachi, T. Inubushi, N. Mizuochi und M. Hatano. Germanium-Vacancy Single Color Centers in Diamond. *Scientific Reports*, **5**, 12882, 2015.
- [140] Y. N. Palyanov, I. N. Kupriyanov, Y. M. Borzdov und N. V. Surovtsev. Germanium: a new catalyst for diamond synthesis and a new optically active impurity in diamond. *Scientific Reports*, **5**, 14789, 2015.
- [141] E. A. Ekimov, S. G. Lyapin, K. N. Boldyrev, M. V. Kondrin, R. Khmelnskiy, V. A. Gavva, T. V. Kotereva und M. N. Popova. Germanium-vacancy color center in isotopically enriched diamonds synthesized at high pressures. *JETP Letters*, **102**, 701–706, 2015.
- [142] T. Iwasaki, Y. Miyamoto, T. Taniguchi, P. Siyushev, M. H. Metsch, F. Jelezko und M. Hatano. Tin-Vacancy Quantum Emitters in Diamond. *Physical Review Letters*, **119**, 253601, 2017.
- [143] M. E. Trusheim, N. H. Wan, K. C. Chen, C. J. Ciccarino, J. Flick, R. Sundararaman, G. Malladi, E. Bersin, M. Walsh, B. Lienhard, H. Bakhru, P. Narang und D. Englund. Lead-related quantum emitters in diamond. *Physical Review B*, **99**, 075430, 2019.
- [144] M. K. Bhaskar, D. D. Sukachev, A. Sipahigil, R. E. Evans, M. J. Burek, C. T. Nguyen, L. J. Rogers, P. Siyushev, M. H. Metsch, H. Park, F. Jelezko, M. Lončar und M. D. Lukin. Quantum Nonlinear Optics with a Germanium-Vacancy Color Center in a Nanoscale Diamond Waveguide. *Physical Review Letters*, **118**, 223603, 2017.
- [145] M. E. Trusheim, B. Pingault, N. H. Wan, M. Gundogan, L. D. Santis, K. C. Chen, M. Walsh, J. J. Rose, J. N. Becker, B. Lienhard, E. Bersin, G. Malladi, H. Bakhru, I. Walmsley, M. Atature und D. Englund. Transform-limited photons from a tin-vacancy spin in diamond. *arXiv*, **1811.07777**, 2018.
- [146] C. D. Clark und C. A. Norris. Photoluminescence associated with the 1.673, 1.944 and 2.498 eV centres in diamond. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, **4**, 2223, 1971.
- [147] F. Jelezko und J. Wrachtrup. Single defect centres in diamond: A review. *physica status solidi (a)*, **203**, 3207–3225, 2006.
- [148] A. M. Edmonds, U. F. S. D’Haenens-Johansson, R. J. Cruddace, M. E. Newton, K.-M. C. Fu, C. Santori, R. G. Beausoleil, D. J. Twitchen und M. L. Markham. Production of oriented nitrogen-vacancy color centers in synthetic diamond. *Physical Review B*, **86**, 035201, 2012.

- [149] R. Albrecht, A. Bommer, C. Deutsch, J. Reichel und C. Becher. Coupling of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond to a Fiber-Based Microcavity. *Physical Review Letters*, **110**, 243602, 2013.
- [150] P. Siyushev, V. Jacques, I. Aharonovich, F. Kaiser, T. Müller, L. Lombez, M. Atatüre, S. Castelletto, S. Prawer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Low-temperature optical characterization of a near-infrared single-photon emitter in nanodiamonds. *New Journal of Physics*, **11**, 113029, 2009.
- [151] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup und L. C. L. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Physics Reports - Review Section of Physics Letters*, **528**, 1–45, 2013.
- [152] L. J. Rogers, S. Armstrong, M. J. Sellars und N. B. Manson. Infrared emission of the NV centre in diamond: Zeeman and uniaxial stress studies. *New Journal of Physics*, **10**, 103024, 2008.
- [153] L. J. Rogers, M. W. Doherty, M. S. J. Barson, S. Onoda, T. Ohshima und N. B. Manson. Singlet levels of the NV centre in diamond. *New Journal of Physics*, **17**, 013048, 2015.
- [154] R. Epstein, F. M. Mendoza, Y. Kato und D. D. Awschalom. Anisotropic interactions of a single spin and dark-spin spectroscopy in diamond. *Nature Physics*, **1**, 94–98, 2005.
- [155] A. Batalov, C. Zierl, T. Gaebel, P. Neumann, I.-Y. Chan, G. Balasubramanian, P. R. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Temporal Coherence of Photons Emitted by Single Nitrogen-Vacancy Defect Centers in Diamond Using Optical Rabi-Oscillations. *Physical Review Letters*, **100**, 077401, 2008.
- [156] Y. Mita. Change of absorption spectra in type-Ib diamond with heavy neutron irradiation. *Physical Review B*, **53**, 11360–11364, 1996.
- [157] F. Jelezko, I. Popa, A. Gruber, C. Tietz, J. Wrachtrup, A. Nizovtsev und S. Kilin. Single spin states in a defect center resolved by optical spectroscopy. *Applied Physics Letters*, **81**, 2160–2162, 2002.
- [158] C. Santori, D. Fattal, S. M. Spillane, M. Fiorentino, R. G. Beausoleil, A. D. Greentree, P. Olivero, M. Draganski, J. R. Rabeau, P. Reichart, B. C. Gibson, S. Rubanov, D. N. Jamieson und S. Prawer. Coherent population trapping in diamond N-V centers at zero magnetic field. *Optics Express*, **14**, 7986–7994, 2006.
- [159] E. van Oort, N. B. Manson und M. Glasbeek. Optically detected spin coherence of the diamond N-V centre in its triplet ground state. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, **21**, 4385, 1988.
- [160] N. Reddy. Two-laser spectral hole burning in a colour centre in diamond. *Journal of Luminescence*, **38**, 46–47, 1987.

- [161] K. Holliday, N. B. Manson, M. Glasbeek und E. van Oort. Optical hole-bleaching by level anti-crossing and cross relaxation in the N-V centre in diamond. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **1**, 7093, 1989.
- [162] J. P. Goss, R. Jones, S. J. Breuer, P. R. Briddon und S. Öberg. The Twelve-Line 1.682 eV Luminescence Center in Diamond and the Vacancy-Silicon Complex. *Physical Review Letters*, **77**, 3041–3044, 1996.
- [163] A. Gali, M. Fyta und E. Kaxiras. Ab initio supercell calculations on nitrogen-vacancy center in diamond: Electronic structure and hyperfine tensors. *Physical Review B*, **77**, 155206, 2008.
- [164] P. Delaney, J. Greer und J. Larsson. Spin-Polarization Mechanisms of the Nitrogen-Vacancy Center in Diamond. *Nano Letters*, **10**, 610–614, 2010.
- [165] A. Batalov, V. Jacques, F. Kaiser, P. Siyushev, P. Neumann, L. J. Rogers, R. L. McMurtrie, N. B. Manson, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Low Temperature Studies of the Excited-State Structure of Negatively Charged Nitrogen-Vacancy Color Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **102**, 195506, 2009.
- [166] P. Tamarat, T. Gaebel, J. R. Rabeau, M. Khan, A. D. Greentree, H. Wilson, L. C. L. Hollenberg, S. Praver, P. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Stark Shift Control of Single Optical Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **97**, 083002, 2006.
- [167] A. Lenef und S. C. Rand. Electronic structure of the NV center in diamond: Theory. *Physical Review B*, **53**, 13441–13455, 1996.
- [168] M. Steiner, P. Neumann, J. Beck, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Universal enhancement of the optical readout fidelity of single electron spins at nitrogen-vacancy centers in diamond. *Physical Review B*, **81**, 035205, 2010.
- [169] N. B. Manson, J. P. Harrison und M. J. Sellars. Nitrogen-vacancy center in diamond: Model of the electronic structure and associated dynamics. *Physical Review B*, **74**, 104303, 2006.
- [170] N. Kalb, P. C. Humphreys, J. J. Slim und R. Hanson. Dephasing mechanisms of diamond-based nuclear-spin memories for quantum networks. *Physical Review A*, **97**, 062330, 2018.
- [171] M. L. Goldman, A. Sipahigil, M. W. Doherty, N. Y. Yao, S. D. Bennett, M. Markham, D. J. Twitchen, N. B. Manson, A. Kubanek und M. D. Lukin. Phonon-Induced Population Dynamics and Intersystem Crossing in Nitrogen-Vacancy Centers. *Physical Review Letters*, **114**, 145502, 2015.
- [172] G. Thiering und A. Gali. Theory of the optical spin-polarization loop of the nitrogen-vacancy center in diamond. *Physical Review B*, **98**, 085207, 2018.

- [173] K.-M. C. Fu, C. Santori, P. E. Barclay, L. J. Rogers, N. B. Manson und R. G. Beausoleil. Observation of the Dynamic Jahn-Teller Effect in the Excited States of Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **103**, 256404, 2009.
- [174] F. Grazioso, B. R. Patton, P. Delaney, M. Markham, D. Twitchen und J. Smith. Measurement of the full stress tensor in a crystal using photoluminescence from point defects: The example of nitrogen vacancy centers in diamond. *Applied Physics Letters*, **103**, 101905–101905, 2013.
- [175] V. M. Acosta, A. Jarmola, E. Bauch und D. Budker. Optical properties of the nitrogen-vacancy singlet levels in diamond. *Physical Review B*, **82**, 201202, 2010.
- [176] P. Neumann, R. Kolesov, V. Jacques, J. Beck, J. Tisler, A. Batalov, L. Rogers, N. B. Manson, G. Balasubramanian, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Excited-state spectroscopy of single NV defects in diamond using optically detected magnetic resonance. *New Journal of Physics*, **11**, 013017, 2009.
- [177] R. Ulbricht und Z.-H. Loh. Excited-state lifetime of the NV^- infrared transition in diamond. *Physical Review B*, **98**, 094309, 2018.
- [178] L. Robledo, H. Bernien, I. van Weperen und R. Hanson. Control and Coherence of the Optical Transition of Single Nitrogen Vacancy Centers in Diamond. *Physical Review Letters*, **105**, 177403, 2010.
- [179] E. van Oort, P. Stroover und M. Glasbeek. Low-field optically detected magnetic resonance of a coupled triplet-doublet defect pair in diamond. *Physical Review B*, **42**, 8605–8608, 1990.
- [180] V. V. Dobrovitski, A. E. Feiguin, D. D. Awschalom und R. Hanson. Decoherence dynamics of a single spin versus spin ensemble. *Physical Review B*, **77**, 245212, 2008.
- [181] S. Felton, A. M. Edmonds, M. E. Newton, P. M. Martineau, D. Fisher, D. J. Twitchen und J. M. Baker. Hyperfine interaction in the ground state of the negatively charged nitrogen vacancy center in diamond. *Physical Review B*, **79**, 075203, 2009.
- [182] M. W. Doherty, F. Dolde, H. Fedder, F. Jelezko, J. Wrachtrup, N. B. Manson und L. C. L. Hollenberg. Theory of the ground-state spin of the NV^- center in diamond. *Physical Review B*, **85**, 205203, 2012.
- [183] L. Rondin, J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-F. Roch, P. Maletinsky und V. Jacques. Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond. *Reports on Progress in Physics*, **77**, 056503, 2014.
- [184] B. W. Shore. *Manipulating Quantum Structures Using Laser Pulses*. Cambridge University Press, 2011.
- [185] R. Hanson, V. V. Dobrovitski, A. E. Feiguin, O. Gywat und D. D. Awschalom. Coherent Dynamics of a Single Spin Interacting with an Adjustable Spin Bath. *Science*, **320**, 352–355, 2008.

- [186] R. P. Mildren und J. R. Rabeau. *Optical Engineering of Diamond*. Wiley VCH, 2013.
- [187] L. Allen und J. H. Eberly. *Optical Resonance and Two-Level Atoms*. Dover Publications, 1987.
- [188] J. Wolters, N. Sadzak, A. W. Schell, T. Schröder und O. Benson. Measurement of the Ultrafast Spectral Diffusion of the Optical Transition of Nitrogen Vacancy Centers in Nano-Size Diamond Using Correlation Interferometry. *Physical Review Letters*, **110**, 027401, 2013.
- [189] S. Pezzagna, B. Naydenov, F. Jelezko, J. Wrachtrup und J. Meijer. Creation efficiency of nitrogen-vacancy centres in diamond. *New Journal of Physics*, **12**, 065017, 2010.
- [190] H. A. Jahn und E. Teller. Stability of polyatomic molecules in degenerate electronic states - I—Orbital degeneracy. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **161**, 220–235, 1937.
- [191] G. Davies. The Jahn-Teller effect and vibronic coupling at deep levels in diamond. *Reports on Progress in Physics*, **44**, 787, 1981.
- [192] J. Zhang, C.-Z. Wang, Z. Z. Zhu und V. V. Dobrovitski. Vibrational modes and lattice distortion of a nitrogen-vacancy center in diamond from first-principles calculations. *Physical Review B*, **84**, 035211, 2011.
- [193] E. T. Jaynes und F. W. Cummings. Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proceedings of the IEEE*, **51**, 89–109, 1963.
- [194] M. Fox. *Quantum Optics*. Oxford University Press, New York, 2006.
- [195] R. Coccioli, M. Boroditsky, K. W. Kim, Y. Rahmat-Samii und E. Yablonovitch. Smallest possible electromagnetic mode volume in a dielectric cavity. *IEE Proceedings - Optoelectronics*, **145**, 391–397, 1998.
- [196] P. Meystre und M. Sargent. *Elements of Quantum Optics*. Springer-Verlag, 1998.
- [197] A. T. Collins, M. F. Thomaz und M. I. B. Jorge. Luminescence decay time of the 1.945 eV centre in type Ib diamond. *Journal of Physics C: Solid State Physics*, **16**, 2177, 1983.
- [198] C. M. d. S. B. Russo. *Photon statistics of a single ion coupled to a high-finesse cavity*. Dissertation, Leopold-Franzens-Universität Innsbruck, 2008.
- [199] P. Michler (Herausgeber). *Single Quantum Dots*. Springer, 2003.
- [200] A. Auffèves, D. Gerace, J.-M. Gérard, M. F. m. c. Santos, L. C. Andreani und J.-P. Poizat. Controlling the dynamics of a coupled atom-cavity system by pure dephasing. *Physical Review B*, **81**, 245419, 2010.
- [201] R. Albrecht. *Coupling of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond to a Fiber-Based Microcavity*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2014.

- [202] A. Auffèves, J.-M. Gérard und J.-P. Poizat. Pure emitter dephasing: A resource for advanced solid-state single-photon sources. *Physical Review A*, **79**, 053838, 2009.
- [203] J. D. Joannopoulos, R. D. Meade und N. Winn. *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*. Zweite Auflage. Princeton University Press, Princeton, 2008.
- [204] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Dritte Auflage. Wiley, New York, 1998.
- [205] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics*. Benjamin, New York, 1965.
- [206] H. Ibach und H. Lüth. *Festkörperphysik*. Sechste Auflage. Springer-Verlag, Berlin, 2002.
- [207] S. Johnson und J. Joannopoulos. Block-iterative frequency-domain methods for Maxwell's equations in a planewave basis. *Optics Express*, **8**, 173–190, 2001.
- [208] A. Edelman und S. T. Smith. On conjugate gradient-like methods for eigen-like problems. *BIT*, **36**, 494–508, 1996.
- [209] J. M. Lourtioz, H. Benisty, V. Berger, J.-M. Gérard, D. Maystre und A. Tchelnokow. *Photonic Crystals: Towards Nanoscale Photonic Devices*. Springer-Verlag, Berlin, 2005.
- [210] J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve und S. H. Fan. Photonic crystals: Putting a new twist on light. *Nature*, **386**, 143–149, 1997.
- [211] S. Noda, M. Fujita und T. Asano. Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities. *Nature Photonics*, **1**, 449–458, 2007.
- [212] E. Yablonovitch, T. J. Gmitter und K. M. Leung. Photonic band-structure - The face-centered-cubic case employing nonspherical atoms. *Physical Review Letters*, **67**, 2295–2298, 1991.
- [213] Z. Y. Zhang und M. Qiu. Small-volume waveguide-section high Q microcavities in 2D photonic crystal slabs. *Optics Express*, **12**, 3988–3995, 2004.
- [214] Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song und S. Noda. High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal. *Nature*, **425**, 944–947, 2003.
- [215] Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song und S. Noda. Fine-tuned high-Q photonic-crystal nanocavity. *Optics Express*, **13**, 1202–1214, 2005.
- [216] Y. Song, M. Liu, Y. Zhang, X. Wang und C. Jin. High-Q photonic crystal slab nanocavity with an asymmetric nanohole in the center for QED. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, **28**, 265–274, 2011.
- [217] S. Tomljenovic-Hanic, M. J. Steel, C. M. de Sterke und J. Salzman. Diamond based photonic crystal microcavities. *Optics Express*, **14**, 3556–3562, 2006.

- [218] C. F. Wang, R. Hanson, D. D. Awschalom, E. L. Hu, T. Feygelson, J. Yang und J. E. Butler. Fabrication and characterization of two-dimensional photonic crystal microcavities in nanocrystalline diamond. *Applied Physics Letters*, **91**, 201112, 2007.
- [219] L. Li, I. Bayn, M. Lu, C.-Y. Nam, T. Schroeder, A. Stein, N. C. Harris und D. Englund. Nanofabrication on unconventional substrates using transferred hard masks. *Scientific Reports*, **5**, 7802, 2015.
- [220] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos und S. G. Johnson. Meep: A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method. *Computer Physics Communications*, **181**, 687–702, 2010.
- [221] K. S. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, **AP14**, 302–307, 1966.
- [222] V. A. Mandelshtam und H. S. Taylor. Harmonic inversion of time signals and its applications. *Journal of Chemical Physics*, **109**, 4128, 1998.
- [223] D. W. Prather, S. Shi, A. Sharkawy, J. Murakowski und G. J. Schneider. *Photonic Crystals: Theory, Applications and Fabrication*. Wiley, New Jersey, 2009.
- [224] K. J. Vahala (Herausgeber). *Optical Microcavities*. World Scientific, New Jersey, 2004.
- [225] S. H. Kim, G. H. Kim, S. K. Kim, H. G. Park, Y. H. Lee und S. B. Kim. Characteristics of a stick waveguide resonator in a two-dimensional photonic crystal slab. *Journal of Applied Physics*, **95**, 411–416, 2004.
- [226] T. Asano und S. Noda. Photonics - Tuning holes in photonic-crystal nanocavities - Reply. *Nature*, **429**, 02603, 2004.
- [227] X. Letartre, C. Seassal, C. Grillet, P. Rojo-Romeo, P. Viktorovitch, M. L. d'Yerville, D. Casagne und C. Jouanin. Group velocity and propagation losses measurement in a single-line photonic-crystal waveguide on InP membranes. *Applied Physics Letters*, **79**, 2312–2314, 2001.
- [228] J. Vučković. *Photonic crystal structures for efficient localization or extraction of light*. Dissertation, California Institute of Technology, 2002.
- [229] R. H. Webb. Confocal optical microscopy. *Reports on Progress in Physics*, **59**, 427, 1996.
- [230] R. H. Brown und R. Q. Twiss. Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light. *Nature*, **177**, 27–29, 1956.
- [231] T. Jung, L. Kreiner, C. Pauly, F. Mücklich, A. M. Edmonds, M. Markham und C. Becher. Reproducible fabrication and characterization of diamond membranes for photonic crystal cavities. *physica status solidi (a)*, **213**, 3254–3264, 2016.

- [232] A. P. Magyar, J. C. Lee, A. M. Limarga, I. Aharonovich, F. Rol, D. R. Clarke, M. Huang und E. L. Hu. Fabrication of thin, luminescent, single-crystal diamond membranes. *Applied Physics Letters*, **99**, 081913, 2011.
- [233] I. Bayn, B. Meyler, A. Lahav, J. Salzman, R. Kalish, B. A. Fairchild, S. Praver, M. Barth, O. Benson, T. Wolf, P. Siyushev, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Processing of photonic crystal nanocavity for quantum information in diamond. *Diamond & Related Materials*, **20**, 937–943, 2011.
- [234] J. C. Lee, D. O. Bracher, S. Cui, K. Ohno, C. A. McLellan, X. Zhang, P. Andrich, B. Aleman, K. J. Russell, A. P. Magyar, I. Aharonovich, A. B. Jayich, D. Awschalom und E. L. Hu. Deterministic coupling of delta-doped nitrogen vacancy centers to a nanobeam photonic crystal cavity. *Applied Physics Letters*, **105**, 261101, 2014.
- [235] A. H. Piracha, P. Rath, K. Ganesan, S. Kühn, W. H. P. Pernice und S. Praver. Scalable Fabrication of Integrated Nanophotonic Circuits on Arrays of Thin Single Crystal Diamond Membrane Windows. *Nano Letters*, **16**, 3341–3347, 2016.
- [236] A. H. Piracha, K. Ganesan, D. W. M. Lau, A. Stacey, L. P. McGuinness, S. Tomljenovic-Hanic und S. Praver. Scalable fabrication of high-quality, ultra-thin single crystal diamond membrane windows. *Nanoscale*, **8**, 6860–6865, 2016.
- [237] J. Riedrich-Möller, C. Arend, C. Pauly, F. Mücklich, M. Fischer, S. Gsell, M. Schreck und C. Becher. Deterministic Coupling of a Single Silicon-Vacancy Color Center to a Photonic Crystal Cavity in Diamond. *Nano Letters*, **14**, 5281–5287, 2014.
- [238] M. Challier, S. Sonusen, A. Barfuss, D. Rohner, D. Riedel, J. Koelbl, M. Ganzhorn, P. Appel, P. Maletinsky und E. Neu. Advanced Fabrication of Single-Crystal Diamond Membranes for Quantum Technologies. *Micromachines*, **9**, 148, 2018.
- [239] D. Tran, C. Fansler, T. Grotjohn, D. Reinhard und J. Asmussen. Investigation of mask selectivities and diamond etching using microwave plasma-assisted etching. *Diamond & Related Materials*, **19**, 778 – 782, 2010.
- [240] Y. Siew, G. Sarkar, X. Hu, J. Hui, A. See und C. Chua. Thermal curing of hydrogen silsesquioxane. *Journal of the Electrochemical Society*, **147**, 335–339, 2000.
- [241] C. Yang und W. Chen. The structures and properties of hydrogen silsesquioxane (HSQ) films produced by thermal curing. *Journal of Materials Chemistry*, **12**, 1138–1141, 2002.
- [242] H.-C. Liou und J. Pretzer. Effect of curing temperature on the mechanical properties of hydrogen silsesquioxane thin films. *Thin Solid Films*, **335**, 186 – 191, 1998.
- [243] Y. Tao und C. Degen. Facile Fabrication of Single-Crystal-Diamond Nanostructures with Ultrahigh Aspect Ratio. *Advanced Materials*, **25**, 3962–3967, 2013.

- [244] D. Drouin, A. R. Couture, D. Joly, X. Tastet, V. Aimez und R. Gauvin. CASINO V2.42—A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users. *Scanning*, **29**, 92–101, 2007.
- [245] M. J. Burek, Y. Chu, M. S. Z. Liddy, P. Patel, J. Rochman, S. Meesala, W. Hong, Q. Quan, M. D. Lukin und M. Loncar. High quality-factor optical nanocavities in bulk single-crystal diamond. *Nature Communications*, **5**, 5718, 2014.
- [246] L. Li, T. Schröder, E. H. Chen, H. Bakhru und D. Englund. One-dimensional photonic crystal cavities in single-crystal diamond. *Photonics and Nanostructures - Fundamentals and Applications*, **15**, 130 – 136, 2015.
- [247] Y. Tanaka, T. Asano, Y. Akahane, B. S. Song und S. Noda. Theoretical investigation of a two-dimensional photonic crystal slab with truncated cone air holes. *Applied Physics Letters*, **82**, 1661–1663, 2003.
- [248] A. Stanishevsky. Patterning of diamond and amorphous carbon films using focused ion beams. *Thin Solid Films*, **398**, 560–565, 2001.
- [249] J. Orloff, L. Swanson und M. Utlaut. Fundamental limits to imaging resolution for focused ion beams. *Journal of Vacuum Science & Technology B*, **14**, 3759–3763, 1996.
- [250] J. Orloff, L. W. Swanson und M. Utlaut. *High Resolution Focused Ion Beams: FIB and its Applications*. Luwer Academic/Plenum Publishers New York, 2003.
- [251] M. Hamada, T. Teraji und T. Ito. Field-induced effects of implanted Ga on high electric field diamond devices fabricated by focused ion beam. *Applied Surface Science*, **216**, 65 – 71, 2003.
- [252] C. Uzan-Saguy, C. Cytermann, R. Brener, V. Richter, S. M und R. Kalish. Damage threshold for ion-beam induced graphitization of diamond. *Applied Physics Letters*, **67**, 1194–1196, 1995.
- [253] L. Kreiner. *Interactions between a Colour Centre, Optical, and Mechanical Resonator Modes in a Diamond Structure*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2017.
- [254] M. Notomi, H. Taniyama, S. Mitsugi und E. Kuramochi. Optomechanical Wavelength and Energy Conversion in High- Q Double-Layer Cavities of Photonic Crystal Slabs. *Physical Review Letters*, **97**, 023903, 2006.
- [255] D. Riedel, D. Rohner, M. Ganzhorn, T. Kaldewey, P. Appel, E. Neu, R. J. Warburton und P. Maletinsky. Low-Loss Broadband Antenna for Efficient Photon Collection from a Coherent Spin in Diamond. *Physical Review Applied*, **2**, 064011, 2014.
- [256] J. Vučković, M. Lončar, H. Mabuchi und A. Scherer. Optimization of the Q factor in photonic crystal microcavities. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **38**, 850–856, 2002.

- [257] S. Ramo, J. R. Whinnery und T. Van Duzer. *Fields and Waves in Communication Electronics*. Wiley, New York, 1994.
- [258] X. Zhi-Gang, L. Zhi-Yuan und Z. Dao-Zhong. TM-like and TE-like modes coupling in a two-dimensional photonic crystal slab composed of truncated cone silicon rods. *Chinese Physics Letters*, **25**, 2089–2092, 2008.
- [259] S.-H. Kim, S.-K. Kim und Y.-H. Lee. Vertical beaming of wavelength-scale photonic crystal resonators. *Physical Review B*, **73**, 235117, 2006.
- [260] M. Toishi, D. Englund, A. Faraon und J. Vučković. High-brightness single photon source from a quantum dot in a directional-emission nanocavity. *Optics Express*, **17**, 14618–14626, 2009.
- [261] N.-V.-Q. Tran, S. Combrié und A. De Rossi. Directive emission from high- Q photonic crystal cavities through band folding. *Physical Review B*, **79**, 041101, 2009.
- [262] N.-V.-Q. Tran, S. Combrié, P. Colman, A. De Rossi und T. Mei. Vertical high emission in photonic crystal nanocavities by band-folding design. *Physical Review B*, **82**, 075120, 2010.
- [263] S. L. Portalupi, M. Galli, C. Reardon, T. F. Krauss, L. O’Faolain, L. C. Andreani und D. Gerace. Planar photonic crystal cavities with far-field optimization for high coupling efficiency and quality factor. *Optics Express*, **18**, 16064–16073, 2010.
- [264] M. Narimatsu, S. Kita, H. Abe und T. Baba. Enhancement of vertical emission in photonic crystal nanolasers. *Applied Physics Letters*, **100**, 121117, 2012.
- [265] S. Haddadi, L. Le-Gratiet, I. Sagnes, F. Raineri, A. Bazin, K. Bencheikh, J. A. Levenson und A. M. Yacomotti. High quality beaming and efficient free-space coupling in L3 photonic crystal active nanocavities. *Optics Express*, **20**, 18876–18886, 2012.
- [266] Y. Ota, S. Iwamoto und Y. Arakawa. Asymmetric out-of-plane power distribution in a two-dimensional photonic crystal nanocavity. *Optics Letters*, **40**, 3372–3375, 2015.
- [267] X.-W. Chen, S. Götzinger und V. Sandoghdar. 99% efficiency in collecting photons from a single emitter. *Optics Letters*, **36**, 3545–3547, 2011.
- [268] X.-L. Chu, T. J. K. Brenner, X.-W. Chen, Y. Ghosh, J. A. Hollingsworth, V. Sandoghdar und S. Götzinger. Experimental realization of an optical antenna designed for collecting 99% of photons from a quantum emitter. *Optica*, **1**, 203–208, 2014.
- [269] E. D. Palik und G. Gosh. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1997.
- [270] P. Spinicelli, A. Dréau, L. Rondin, F. Silva, J. Achard, S. Xavier, S. Bansropun, T. Debuischert, S. Pezzagna, J. Meijer, V. Jacques und J.-F. Roch. Engineered arrays of nitrogen-vacancy color centers in diamond based on implantation of CN molecules through nanopertures. *New Journal of Physics*, **13**, 025014, 2011.

- [271] S. Pezzagna, D. Rogalla, D. Wildanger, J. Meijer und A. Zaitsev. Creation and nature of optical centres in diamond for single-photon emission - overview and critical remarks. *New Journal of Physics*, **13**, 035024, 2011.
- [272] J. Meijer, T. Vogel, B. Burchard, I. Rangelow, L. Bischoff, J. Wrachtrup, M. Domhan, F. Jelezko, W. Schnitzler, S. Schulz, K. Singer und F. Schmidt-Kaler. Concept of deterministic single ion doping with sub-nm spatial resolution. *Applied Physics A*, **83**, 321–327, 2006.
- [273] W. Schnitzler, N. M. Linke, R. Fickler, J. Meijer, F. Schmidt-Kaler und K. Singer. Deterministic Ultracold Ion Source Targeting the Heisenberg Limit. *Physical Review Letters*, **102**, 070501, 2009.
- [274] W. Schnitzler, G. Jacob, R. Fickler, F. Schmidt-Kaler und K. Singer. Focusing a deterministic single-ion beam. *New Journal of Physics*, **12**, 065023, 2010.
- [275] J. Meijer, S. Pezzagna, T. Vogel, B. Burchard, H. Bukow, I. Rangelow, Y. Sarov, H. Wiggers, I. Plümel, F. Jelezko, J. Wrachtrup, F. Schmidt-Kaler, W. Schnitzler und K. Singer. Towards the implanting of ions and positioning of nanoparticles with nm spatial resolution. *Applied Physics A*, **91**, 567–571, 2008.
- [276] O. Lehtinen, B. Naydenov, P. Börner, K. Melentjevic, C. Müller, L. P. McGuinness, S. Pezzagna, J. Meijer, U. Kaiser und F. Jelezko. Molecular dynamics simulations of shallow nitrogen and silicon implantation into diamond. *Physical Review B*, **93**, 035202, 2016.
- [277] D. Antonov, T. Häußermann, A. Aird, J. Roth, H.-R. Trebin, C. Müller, L. McGuinness, F. Jelezko, T. Yamamoto, J. Isoya, S. Pezzagna, J. Meijer und J. Wrachtrup. Statistical investigations on nitrogen-vacancy center creation. *Applied Physics Letters*, **104**, 012105, 2014.
- [278] C. Santori, P. E. Barclay, K.-M. C. Fu und R. G. Beausoleil. Vertical distribution of nitrogen-vacancy centers in diamond formed by ion implantation and annealing. *Physical Review B*, **79**, 125313, 2009.
- [279] L. Rondin, G. Dantelle, A. Slablab, F. Grosshans, F. Treussart, P. Bergonzo, S. Perruchas, T. Gacoin, M. Chaigneau, H.-C. Chang, V. Jacques und J.-F. Roch. Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds. *Physical Review B*, **82**, 115449, 2010.
- [280] M. V. Hauf, B. Grotz, B. Naydenov, M. Dankerl, S. Pezzagna, J. Meijer, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. Stutzmann, F. Reinhard und J. A. Garrido. Chemical control of the charge state of nitrogen-vacancy centers in diamond. *Physical Review B*, **83**, 081304, 2011.
- [281] A. N. Newell, D. A. Dowdell und D. H. Santamore. Surface effects on nitrogen vacancy centers neutralization in diamond. *Journal of Applied Physics*, **120**, 185104, 2016.

- [282] M. Lesik, N. Raatz, A. Tallaire, P. Spinicelli, R. John, J. Achard, A. Gicquel, V. Jacques, J.-F. Roch, J. Meijer und S. Pezzagna. Production of bulk NV centre arrays by shallow implantation and diamond CVD overgrowth. *physica status solidi (a)*, **213**, 2594–2600, 2016.
- [283] S. Mosor, J. Hendrickson, B. C. Richards, J. Sweet, G. Khitrova, H. M. Gibbs, T. Yoshie, A. Scherer, O. B. Shchekin und D. G. Deppe. Scanning a photonic crystal slab nanocavity by condensation of xenon. *Applied Physics Letters*, **87**, 141105, 2005.
- [284] K.-M. C. Fu, C. Santori, P. E. Barclay und R. G. Beausoleil. Conversion of neutral nitrogen-vacancy centers to negatively charged nitrogen-vacancy centers through selective oxidation. *Applied Physics Letters*, **96**, 121907, 2010.
- [285] A. Mohtashami und A. F. Koenderink. Suitability of nanodiamond nitrogen–vacancy centers for spontaneous emission control experiments. *New Journal of Physics*, **15**, 043017, 2013.
- [286] I. P. Radko, M. Boll, N. M. Israelsen, N. Raatz, J. Meijer, F. Jelezko, U. L. Andersen und A. Huck. Determining the internal quantum efficiency of shallow-implanted nitrogen-vacancy defects in bulk diamond. *Optics Express*, **24**, 27715–27725, 2016.
- [287] J. Michl, T. Teraji, S. Zaiser, I. Jakobi, G. Waldherr, F. Dolde, P. Neumann, M. W. Doherty, N. B. Manson, J. Isoya und J. Wrachtrup. Perfect alignment and preferential orientation of nitrogen-vacancy centers during chemical vapor deposition diamond growth on (111) surfaces. *Applied Physics Letters*, **104**, 102407, 2014.
- [288] H. Ozawa, K. Tahara, H. Ishiwata, M. Hatano und T. Iwasaki. Formation of perfectly aligned nitrogen-vacancy-center ensembles in chemical-vapor-deposition-grown diamond (111). *Applied Physics Express*, **10**, 045501, 2017.
- [289] E. Bernardi, R. Nelz, S. Sonusen und E. Neu. Nanoscale Sensing Using Point Defects in Single-Crystal Diamond: Recent Progress on Nitrogen Vacancy Center-Based Sensors. *Crystals*, **7**, 124, 2017.
- [290] P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac und M. D. Lukin. Room-Temperature Quantum Bit Memory Exceeding One Second. *Science*, **336**, 1283–1286, 2012.
- [291] A. Reiserer, N. Kalb, M. S. Blok, K. J. M. van Bemmelen, T. H. Taminiau, R. Hanson, D. J. Twitchen und M. Markham. Robust Quantum-Network Memory Using Decoherence-Protected Subspaces of Nuclear Spins. *Physical Review X*, **6**, 021040, 2016.
- [292] S. Yang, Y. Wang, D. D. B. Rao, T. H. Tran, A. S. Momenzadeh, M. Markham, D. J. Twitchen, P. Wang, W. Yang, R. Stöhr, P. Neumann, H. Kosaka und J. Wrachtrup. High-fidelity transfer and storage of photon states in a single nuclear spin. *Nature Photonics*, **10**, 507–511, 2016.

- [293] K. Nemoto, M. Trupke, S. J. Devitt, B. Scharfenberger, K. Buczak, J. Schmiedmayer und W. J. Munro. Photonic Quantum Networks formed from NV centers. *Scientific Reports*, **6**, 26284, 2016.
- [294] F. Rozpedek, R. Yehia, K. Goodenough, M. Ruf, P. C. Humphreys, R. Hanson, S. Wehner und D. Elkouss. Near-term quantum repeater experiments with NV centers: overcoming the limitations of direct transmission. *arXiv*, **1809.00364**, 2018.
- [295] J. G. Skellam. The frequency distribution of the difference between two Poisson variates belonging to different populations. *Journal of the Royal Statistical Society Series A*, **109**, 296, 1946.
- [296] M. Jamali, I. Gerhardt, M. Rezai, K. Frenner, H. Fedder und J. Wrachtrup. Microscopic diamond solid-immersion-lenses fabricated around single defect centers by focused ion beam milling. *Review of Scientific Instruments*, **85**, 123703, 2014.
- [297] T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer und M. Loncar. A diamond nanowire single-photon source. *Nature Nanotechnology*, **5**, 195–199, 2010.
- [298] S. L. Mouradian, T. Schröder, C. B. Poitras, L. Li, J. Goldstein, E. H. Chen, M. Walsh, J. Cardenas, M. L. Markham, D. J. Twitchen, M. Lipson und D. Englund. Scalable Integration of Long-Lived Quantum Memories into a Photonic Circuit. *Physical Review X*, **5**, 031009, 2015.
- [299] R. R. Grote, T. Y. Huang, S. A. Mann, D. A. Hopper, A. L. Exahos, G. G. Lopez, E. C. Garnett und L. C. Bassett. Imaging a Nitrogen-Vacancy Center with a Diamond Immersion Metalens. *arxiv*, **1711.00901**, 2017.
- [300] N. Mizuochi, P. Neumann, F. Rempp, J. Beck, V. Jacques, P. Siyushev, K. Nakamura, D. J. Twitchen, H. Watanabe, S. Yamasaki, F. Jelezko und J. Wrachtrup. Coherence of single spins coupled to a nuclear spin bath of varying density. *Physical Review B*, **80**, 041201, 2009.
- [301] L. Shao, R. Liu, M. Zhang, A. V. Shneidman, X. Audier, M. Markham, H. Dhillon, D. J. Twitchen, Y.-F. Xiao und M. Lončar. Wide-Field Optical Microscopy of Microwave Fields Using Nitrogen-Vacancy Centers in Diamonds. *Advanced Optical Materials*, **4**, 1075–1080, 2016.
- [302] B. K. Ofori-Okai, S. Pezzagna, K. Chang, M. Loretz, R. Schirhagl, Y. Tao, B. A. Moores, K. Groot-Berning, J. Meijer und C. L. Degen. Spin properties of very shallow nitrogen vacancy defects in diamond. *Physical Review B*, **86**, 081406, 2012.
- [303] A. Young, C. Y. Hu, L. Marseglia, J. P. Harrison, J. L. O’Brien und J. G. Rarity. Cavity enhanced spin measurement of the ground state spin of an NV center in diamond. *New Journal of Physics*, **11**, 013007, 2009.

- [304] J.-P. Tetienne, L. Rondin, P. Spinicelli, M. Chipaux, T. Debuisschert, J.-F. Roch und V. Jacques. Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: an application to qualitative all-optical magnetic imaging. *New Journal of Physics*, **14**, 103033, 2012.
- [305] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer und M. D. Lukin. Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond. *Science*, **314**, 281–285, 2006.
- [306] K. Bayat, J. Choy, M. Farrokh Baroughi, S. Meesala und M. Loncar. Efficient, Uniform, and Large Area Microwave Magnetic Coupling to NV Centers in Diamond Using Double Split-Ring Resonators. *Nano Letters*, **14**, 1208–1213, 2014.
- [307] M. Chipaux, A. Tallaire, J. Achard, S. Pezzagna, J. Meijer, V. Jacques, J.-F. Roch und T. Debuisschert. Magnetic imaging with an ensemble of nitrogen-vacancy centers in diamond. *The European Physical Journal D*, **69**, 166, 2015.
- [308] K. Sasaki, Y. Monnai, S. Saijo, R. Fujita, H. Watanabe, J. Ishi-Hayase, K. M. Itoh und E. Abe. Broadband, large-area microwave antenna for optically detected magnetic resonance of nitrogen-vacancy centers in diamond. *Review of Scientific Instruments*, **87**, 053904, 2016.
- [309] T. Schröder, M. E. Trusheim, M. Walsh, L. Li, J. Zheng, M. Schukraft, A. Sipahigil, R. E. Evans, D. D. Sukachev, C. T. Nguyen, J. L. Pacheco, R. M. Camacho, E. S. Bielejec, M. D. Lukin und D. Englund. Scalable focused ion beam creation of nearly lifetime-limited single quantum emitters in diamond nanostructures. *Nature Communications*, **8**, 15376, 2017.
- [310] M. J. Burek, C. Meuwly, R. E. Evans, M. K. Bhaskar, A. Sipahigil, S. Meesala, B. Machielse, D. D. Sukachev, C. T. Nguyen, J. L. Pacheco, E. Bielejec, M. D. Lukin und M. Lončar. Fiber-Coupled Diamond Quantum Nanophotonic Interface. *Physical Review Applied*, **8**, 024026, 2017.
- [311] R. S. Daveau, K. C. Balram, T. Pregolato, J. Liu, E. H. Lee, J. D. Song, V. Verma, R. Mirin, S. W. Nam, L. Midolo, S. Stobbe, K. Srinivasan und P. Lodahl. Efficient fiber-coupled single-photon source based on quantum dots in a photonic-crystal waveguide. *Optica*, **4**, 178–184, 2017.

Danke!

Die vergangenen Jahre sind als eine äußerst lehrreiche aber auch intensive und arbeitsreiche Zeit anzusehen. Ohne Unterstützung wäre die Bewältigung einer derartigen Herausforderung nicht möglich gewesen. Ich bedanke mich bei allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, sowohl an der Universität als auch im privaten und schulischen Umfeld.

Mein Dank geht zunächst an Prof. Dr. Christoph Becher als Betreuer der Dissertation für das Stellen eines interessanten, vielseitigen und relevanten Forschungsthemas sowie für das Einräumen der benötigten Flexibilität zur Koordination der Forschungsarbeit mit der schulischen Tätigkeit. Ebenso möchte ich dem gesamten Schulleitungsteam des Robert-Schuman-Gymnasium in Saarlouis danken für einen im Rahmen der Möglichkeiten kompakten Stundenplan sowie für die generelle Unterstützung während der vergangenen Jahre.

Darüber hinaus möchte ich mich ganz herzlich bei Prof. Dr. Rainer Birringer bedanken, der sich bereit erklärt hat, diese Arbeit als Zweitkorrektor zu begutachten.

Die Forschungsarbeit wäre ohne Kooperationspartner in dieser Form nicht möglich gewesen. Mein Dank geht in erster Linie an Christoph Pauly vom Lehrstuhl Prof. Dr. Frank Mücklich an der UDS für die FIB-Strukturierungen sowie die Unterstützung bei der Entwicklung und Umsetzung der Charakterisierungsmethoden der dünnen Diamantmembranen. Des Weiteren möchte ich Sandra Wolf und Bert Lägél vom Nano-Structuring-Center an der TU in Kaiserslautern danken. Ohne die Möglichkeit, den Reinraum sowie den dort vorhandenen Gerätepool flexibel und intensiv nutzen zu dürfen wären die umgesetzten Forschungsprojekte nicht zu realisieren gewesen. Danke auch an die Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Jan Meijer an der Universität in Leipzig und insbesondere an Nicole Raatz für die Möglichkeit der Nutzung des AFM-Aufbaus für die gezielte Implantation von Stickstoffionen in die photonischen Kristallresonatoren.

Ein großes Dankeschön geht auch an meine aktuellen und ehemaligen Arbeitskollegen. Ohne eure Unterstützung wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Insbesondere möchte ich Philipp Fuchs für die wertvollen Impulse zur Optimierung der von mir angedachten und durchgeführten Simulationen danken. Auch Johannes Görlitz möchte ich danken, der mich ein Jahr im Labor begleitet und unterstützt hat und durch seine positive Einstellung maßgeblich zur Aufrechterhaltung der Motivation beitragen konnte. Philipp und Johannes, euch vielen Dank fürs Korrekturlesen. Danke auch an Benjamin Kambs für die Unterstützung bei den MatLab Berechnungen. Ebenfalls danken möchte ich Elke Neu für die gewinnbringenden Diskussionen sowie ihrem Doktoranden Richard Nelz für die Hilfe bei der Umsetzung des Mikrowellenaufbaus. Elke Huschens, Dir nochmals einen gesonderten Dank für die universitäre Organisation.

Neben der fachlichen Unterstützung hatte ich auch das Glück, in einer recht lebendigen Arbeitsgruppe gelandet zu sein. Die Arbeitsgruppe hat zusammen mit meinen Arbeitskollegen in

der Schule sowie den Klassen und Kursen die ich unterrichten durfte maßgeblich zur Motivation während der letzten Jahre beigetragen. Auch meine Familie und mein privates Umfeld haben ihren Teil beigetragen, sei es durch gezielte Versuche der Ablenkung oder auch schlichtweg durch Verständnis für das hohe Arbeitspensum. Auch an euch Danke!