

Universität Mainz
Institut für Physik

Diplomarbeit

Nachweis der Implantation einzelner Ionen in Festkörper

vorgelegt von

Stefan Weidlich

zur Erlangung des akademischen Grades

Diplom-Physiker

01. Dezember 2011

Erstprüfer: Prof. Dr. Ferdinand Schmidt-Kaler

Zweitprüfer: Prof. Dr. Jochen Walz

Abstract

Solid state systems provide an exciting opportunity to form the basis for modern quantum information. A key advantage is their scalability, which could allow for the coupling of single quantum bits to large quantum registers. Able to be integrated, they additionally offer numerous practical applications, such as in quantum computing, quantum cryptography or for their use as quantum sensor systems.

Among various approaches for implementing solid state based quantum systems, the nitrogen vacancy color center (NV) in diamond presents some of the most promising properties: Coherent control and manipulation of its spin states is possible, even under ambient conditions. Furthermore, entanglement of qubit states with coherence times on the order of milliseconds have already been demonstrated as well as the ability to perform quantum operations with them. Creating powerful NV quantum registers requires deterministic positioning of single centers on a nanometer-scale. Based on a Paul-trap emitting ions with minimal emittance, our group was able to set up a technique that meets those demands.

The goal of this work was to extend the existing trapping-setup to include a suitable implantation site as well as to detect ions implanted into solids. Two different methods of detection were examined with regard to their relative viability and their experimental practicality: optical fluorescence microscopy of NV centers and atomic force microscopy (AFM) of implanted calcium ions.

Regarding the optical detection, I designed an ultra-high vacuum (UHV) apparatus that consists of an N₂ implantation setup and an NV measuring site. A diamond sample can be transferred between them with nanometer precision without compromising the vacuum conditions. With this apparatus flange-mounted to the trapping setup, single color centers may thus be implanted and detected in-situ. Using an NV-doped diamond-specimen, I determined that the spacial resolution of the microscope working inside the UHV chamber is (426 ± 20) nm. The quantum nature of the light emitted from the NV centers was verified via observation of both atomic saturation and anti-bunching in the fluorescence light. Preparations have been made to further improve the microscope's resolution into the range of ten nanometers by adding a non-diffraction limited microscope (STED) to the setup.

Using an AFM to detect implanted ions on the other hand, has the advantage of being independent of the creation efficiency of NV implantation. Additionally, this method is not limited to optically active implantations, such as the nitrogen forming color centers, and offers the possibility to demonstrate implantation of different ions, e.g. calcium. In cooperation with M. Nimmrich¹ and S. Pezzagna² a scheme was devised which allows one to implant single ions into a sample, to transport it and to measure the created defects. This method provides solutions to both of the main obstacles on the way: marking the implantation site on the sample and disposing of absorbents contaminating the surface, making the detection of the created defects possible. While at present measurements of deterministically implanted ions are in preparation, a first experimental run has already been able to demonstrate a proof of principle.

¹AG A. Kühnle, physikalische Chemie, Universität Mainz

²AG J. Meijer, RUBION, Ruhr Universität Bochum

Kurzfassung

Festkörpersysteme stellen eine hervorragende Basis für die moderne Quanteninformation dar. Ein entscheidender Vorteil betrifft ihre Skalierbarkeit, die unterschiedliche Methoden der Verknüpfung einzelner Quantenbits zu großen Quantenregistern erlaubt. Die Integrationsfähigkeit solcher Systeme eröffnet zahlreiche Anwendungen - von Quantencomputing über Quanten-Sensorik zu Quanten-Kryptographie.

Unter den vielen Realisierungsansätzen sticht das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum (NV) in Diamant hervor. Einerseits ermöglicht es selbst unter Normalbedingungen kohärente Adressierung und Kontrolle einzelner Qubits, während andererseits die Erzeugung über Millisekunden kohärenter verschränkter Zustände gezeigt sowie Quantenoperationen durchgeführt werden konnten. Um hiermit Quantenregister zu erzeugen, ist deterministisches Positionieren einzelner NV Zentren mit einer Genauigkeit weniger Nanometer notwendig. Durch eine in unserer Arbeitsgruppe entwickelte Einzelionenquelle sind diese Voraussetzungen erstmals zu erfüllen. Auf Basis einer Paulfalle können Ionen mit minimaler Emmitanz extrahiert und in Festkörper implantiert werden.

Im Rahmen dieser Diplomarbeit waren die Erweiterung des Aufbaus um einen Implantationsplatz sowie der Nachweis in Festkörper implantierter Dotierungs-Ionen meine Aufgaben. Zwei unterschiedliche Nachweisverfahren wurden in ihren Vor- und Nachteilen sowie ihrer praktischen Umsetzbarkeit geprüft: optische Fluoreszenzmikroskopie implantierter NV Zentren und Rasterkraftmikroskopie implantierter Kalzium Ionen.

Für den optischen Nachweis habe ich einen Versuchsaufbau konstruiert, welcher aus einer UHV Apparatur, einem N₂ Implantations- und einem NV Messplatz besteht, zwischen welchen eine Diamant Probe mit Nanometer-Genauigkeit bewegt werden kann ohne das UHV zu brechen. Durch das Anflanschen dieses Messplatzes an die Einzelionenquelle können so Farbzentren erzeugt und in-situ nachgewiesen werden. An einer mit NV Zentren besetzten Diamantprobe konnte ich die räumliche Auflösung des speziellen, im UHV arbeitenden Fluoreszenzmikroskops auf (426 ± 20) nm demonstrieren, die Quanteneigenschaften des von einzelnen NV Zentren emittierten Lichtes über die Sättigungseigenschaften und die Intensitätskorrelationsfunktion $g^{(2)}$ nachweisen. Vorbereitungen sind getroffen um die Auflösung mit nicht beugungsbegrenzten Mikroskopietechniken (STED) in den Bereich von zehn Nanometern weiter voranzutreiben.

Die alternative Nachweismethode einzelner Ionen mittels AFM bietet den Vorteil, von der Bildungswahrscheinlichkeit eines fluoreszierenden NV Zentrums der Stickstoffimplantation unabhängig zu sein. Zusätzlich lässt sich hier beliebige Ionen nachweisen und nicht nur solche wie Stickstoff, die zu optisch aktiven Zentren führen. In Zusammenarbeit mit M. Nimmrich³ und S. Pezzagna⁴ wurde ein Konzept entwickelt, welches die Implantation einzelner Ionen in eine Probe, deren Transport und das Untersuchen der einzelnen erzeugten Defekte erlaubt. Es konnten dabei Antworten auf beiden Hürden, das Markieren der Implantationsstelle und das Schützen der Probe gegen Oberflächenverunreinigungen, gefunden werden. Während die Messung deterministisch implantierter Ionen derzeit vorbereitet wird, konnte das Messkonzept in einem ersten experimentellen Lauf bereits erfolgreich gezeigt werden.

³AG A. Kühnle, physikalische Chemie, Universität Mainz

⁴AG J. Meijer, RUBION, Ruhr Universität Bochum

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Überblick	1
2. Das NV Zentrum und seine Erzeugung	11
2.1. Das NV Zentrum in Diamant	11
2.1.1. Die Eigenschaften des Diamanten	12
2.1.2. Die Erzeugung von Farbzentren	14
2.1.3. Die Eigenschaften des NV Zentrums	18
2.2. Überblick über das Gesamtexperiment	23
2.3. Ionenfalle als Einzelionenquelle	25
3. Nachweis einzelner NV Zentren	29
3.1. Das Konfokalmikroskop	30
3.1.1. Funktionsweise eines Konfokalmikroskops	30
3.1.2. Kontrast und Auflösungsvermögen	31
3.1.3. Das Mikroskop im Experiment	33
3.2. Die Detektorkammer	37
4. Messungen mit NV Zentren	43
4.1. Vorstellung der Probe und erster Messungen	43
4.2. Sättigungsmessung	49
4.3. Korrelationsmessungen	52
4.4. Sättigung und Korrelation mehrerer Farbzentren	61
4.5. Auflösungsvermögen, Detektionseffizienz und Stabilität	64
4.6. Messungen unter Vakuumbedingungen	69
5. Ionennachweis durch Rasterkraftmikroskopie	73
5.1. Die Funktionsweise des Rasterkraftmikroskops	74
5.2. Prinzip und Messungen	75
6. Zusammenfassung und Ausblick	81
A. Anhang	83
A.1. Zur Berechnung des theoretischen Auflösungsvermögens	83

A.2. Zur Gaußfunktion als Fitkurve	85
A.3. Die Parameter der Fits	87
A.4. Zur Steuerungs-Software	87
B. Literaturverzeichnis	89
Literaturverzeichnis	98

Abbildungsverzeichnis

1.1. Optische Fluoreszenzmikroskopie	3
1.2. NV Zentren als Quantenregister	4
1.3. Beugungsunbegrenzte optische Mikroskopie	6
1.4. Methoden zum Nachweis einzelner implantierter Ionen	7
1.5. Einzelne Dotieratome in Graphen	8
2.1. Kristallstruktur des Diamanten	13
2.2. Implantation in Diamant	15
2.3. Konversionseffizienz des NV Zentrums	17
2.4. Kristallstruktur des NV Zentrums	18
2.5. Fluoreszenzspektrum des NV Zentrums	20
2.6. Termschemata des NV Zentrums	21
2.7. Überblick über das Gesamtexperiment	24
2.8. Die Ionenfalle im Experiment	26
2.9. Die Ionenfalle als Einzelionenquelle	27
3.1. Funktionsprinzip des Konfokalmikroskops	31
3.2. Das Auflösungsvermögen	32
3.3. Vergleich der Auflösungsvermögen von Konfokal- und Weitfeldmikroskop	34
3.4. Die Optik im Experiment	35
3.5. Aufbau der UHV Detektionskammer	39
3.6. Objektiv und Verschiebetisch in der Detektionskammer	40
3.7. Der Ionendetektor	41
4.1. Probenherstellung mittels durchbohrter AFM Spitze	44
4.2. Überblick über die Probe	46
4.3. Aufnahmen über verschiedene Tiefenebenen	47
4.4. Implantierte Muster	48
4.5. Isoliertes Farbzentrum	50
4.6. Sättigungskurve eines Farbzentrums	51
4.7. Aufbau und Erwartungen zur Korrelationsmessung	53
4.8. Zeitliche Verteilung gezählter Ereignisse	55
4.9. $g^{(2)}(\tau)$ Messungen	58

4.10. $g^{(2)}(\tau)$ Fitkurven	60
4.11. Sättigungskurven mehrerer Farbzentren	62
4.12. $g^{(2)}(\tau)$ Messungen an mehreren Farbzentren	63
4.13. Fits zur Auflösungsbestimmung	65
4.14. Auflösung des Aufbaus	66
4.15. Massenspektrum des Objektives im Vakuum	70
4.16. Vergleich Vakuum- und Luftaufnahme	71
5.1. Die Funktionsweise des AFM	74
5.2. Kontamination einer CaF_2 Oberfläche	76
5.3. Erzeugung von Markierungen	77
5.4. AFM Aufnahme in CaF_2 implantierter Ar Ionen	78
5.5. Deterministische Implantation	79
A.1. Optische Achse und Fokalebene	84
A.2. Gaußfunktion im Vergleich zum theoretischen Verlauf	86
A.3. Die Steuerungs-Software	88

1

Einleitung und Überblick

Ein Verständnis über Quantensysteme zu erlangen, sie zu kontrollieren und in zukünftigen Techniken und Anwendungen einzusetzen ist Anstoß zahlreicher Experimente und die treibende Motivation Wissenschaftler unterschiedlicher Gebiete - von Quantenchemie über Interferometrie zu Metrologie und Quantencomputing.

Durch Quantencomputing allein, sollte seine technische Umsetzung glücken, wird bahnbrechender Durchbruch in der Informationsverarbeitung prognostiziert. Seit seiner theoretischen Beschreibung 1982 (Feynman, 1982) wurden zahlreiche Überlegungen zu den Vorteilen eines Quantencomputers und über dazu notwendige mathematische Formulierungen der Datenverarbeitung auf Basis von Quantensystemen vorgebracht. Es konnten Algorithmen, wie etwa der Shor- (Shor, 1997) oder der Deutsch-Jozsa-Algorithmus (Deutsch u. Jozsa), entwickelt werden, die in der Lage sind Problemklassen effizient zu lösen, bei denen ein klassischer Computer grundsätzlich scheitern muss. Auch wurden Anforderungen an die physikalischen Eigenschaften eines in Frage kommenden Quantensystems formuliert, auf dessen Basis Quantenrechenoperationen durchführbar wären¹. Das Augenmerk liegt dabei darauf einzelne, miteinander wechselwirkende Zweiniveausysteme, genannt Qubits, zu finden, die kohärent von einem in den anderen Zustand überführbar sind. Hierbei muss die Stärke der Wechselwirkung der Einzelsysteme untereinander kontrollierbar sein, um sowohl das Ein- und Auslesen der Zustände als auch die Kopplung der Qubits untereinander zu ermöglichen. Obgleich die Anforderungen an die Quantensysteme hoch sind, existiert eine Reihe potentieller Kandidaten, wie etwa solche, die auf dem Fangen neutraler oder geladener Atome (Cirac u. Zoller, 1995), auf Josephson Kontakten supraleitender Materialien (Clarke u. Wilhelm, 2008), auf Quantenpunkten in Halbleitern (Loss u. DiVincenzo, 1998) oder auf Kernspins von Donatoratomen in Halbleitern (Kane, 1998) basieren. Während jedes System eigene

¹Eine übersichtliche und verständliche Abhandlung der für das Quantencomputing notwendigen Systemeigenschaften schrieb DiVincenzo (2000).

Vor- und Nachteile mit sich bringt, rücken dabei festkörperbasierte Ansätze neben den bereits etablierten atomaren bzw. ionischen Systemen - an denen bereits zahlreiche Erfolge erzielt werden konnten - immer stärker in den Fokus aktueller Forschung.

Festkörperquantensysteme

Neben etlichen Vorteilen, wie z.B. eine im Vergleich meist simple praktische Handhabung, einer einfacheren Kontrolle über ihre Bewegungsmoden und geringerem experimentellen Aufwand, bringen Festkörpersysteme ebenso ihre Nachteile mit sich. So sind die von Nanosekunden bis zu einigen Mikrosekunden (de Sousa u. Das Sarma, 2003) variierenden Kohärenzzeiten meist deutlich kürzer als etwa für gespeicherte Ionen der Fall. Auch ist die Kopplung an das Umfeld innerhalb eines Festkörpers stärker, komplizierter und es erscheint zunächst schwierig die Stärke der Wechselwirkung zu kontrollieren. Mit Farbzentren in Diamant jedoch ist erstmals eine Lösung dieser Probleme gefunden. Aufgrund geringer paramagnetischer Einflüsse im reinsten ^{12}C sowie sehr hoher Debye-Temperatur (2200 K, Spear u. Dismukes (1994)) des Diamantgitters lassen sich leicht Kohärenzzeiten im Bereich von 100 μs erreichen, wobei diese maßgeblich durch Kopplung der Qubits mit den verbliebenen ^{13}C -Kernspins innerhalb des Diamantgitters begrenzt sind (Wrachtrup u. Jelezko, 2006). Dieser Anteil lässt sich seinerseits jedoch über einen weiten Bereich kontrollieren und Diamanten sind herstellbar, bei denen der ^{13}C -Anteil auf einige Promille reduziert ist (Balasubramanian u. a., 2009). Auf diese Weise lassen sich die Kohärenzzeiten bis in den Sekundenbereich steigern. Ferner konnten mit Stickstoff-Farbzentren in Diamant (NV) bereits Quantenregister erzeugt werden, in denen einzelne NV Zentren über magnetische Dipolkräfte miteinander wechselwirken und sich ihre Zustände einzeln setzen als auch auslesen lassen (Neumann u. a., 2010). Ihre mechanische sowie ihre Photostabilität, selbst bei Raumtemperatur und unter Atmosphäre, nebst der einfachen Adressierung mittels optischer Auslese reduzieren den experimentellen Aufwand zur Erzeugung von Quantenregistern gegenüber Alternativsystemen dabei um ein Vielfaches. Der sicherlich größte Vorteil im Falle der Farbzentren ist die einfachere Skalierbarkeit. Es lassen sich theoretisch beliebig viele NV Zentren nebeneinander platzieren, die über ihre gegenseitige Wechselwirkung so ein entsprechend großes Quantenregister mit einzeln beschreib- und auslesbaren Qubits erzeugen. Diese Skalierbarkeit konnte bisher noch kein anderes System erfüllen.

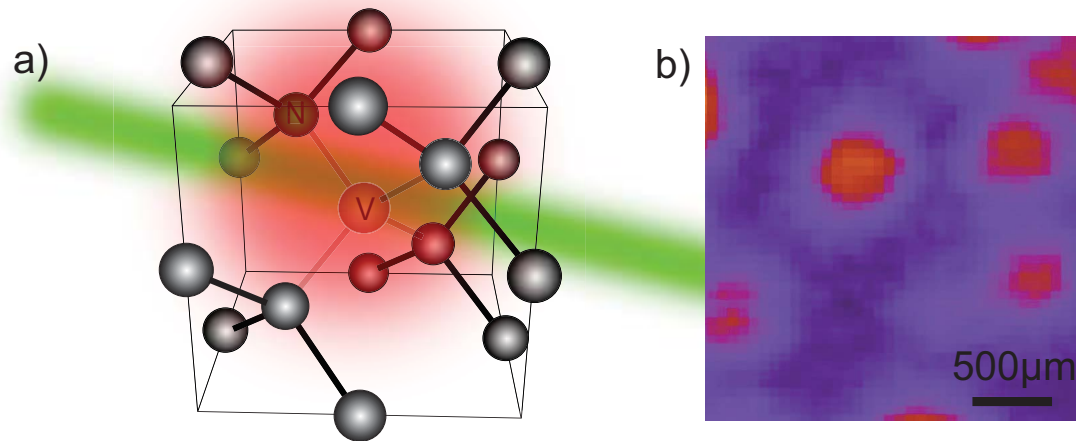


Abbildung 1.1.: a) Ein Anregungslaser treibt einen optischen Übergang zwischen Energiezuständen des NV Zentrums. Durch die Emission von Fluoreszenzlicht regt sich das Zentrum wieder ab. Rastert man eine Probe, so liefert die Auftragung der gemessenen Lichtintensität je Position eine Aufnahme, an der atomare Defekte, die Farbzentren, sichtbar sind (b)). Die hier gezeigten Werte sind mit Hilfe des neu aufgebauten Mikroskops gewonnen.

Die Erzeugung eines Farbzentrens

Doch auch das Farbzentrum als Kandidat vernetzter, miteinander wechselwirkender Qubits bringt Nachteile mit sich. Damit die Wechselwirkung untereinander ausreichende Stärke besitzt, müssen die Farbzentren in einem Abstand weniger Nanometer positioniert werden. Bisher ist diese Positionierung technisch nicht deterministisch umsetzbar und für Experimente, bei denen NV Zentren miteinander wechselwirken sollen, müssen zufällig benachbarte Zentren gefunden werden. In unserer Arbeitsgruppe wurde daher eine Technik entworfen, die die Problematik lösen und einzelne Farbzentren deterministisch auf einer Nanometerskala erzeugen kann. Dabei nutzt man die Eigenschaften einer elektromagnetischen Falle, die es erlauben Ionen einzeln zu speichern, ihre Bewegungsmoden zu beherrschen und sie durch Extraktion in einer vorher definierten Anzahl in einen Festkörper zu schießen (Schnitzler u. a., 2009). Die Auflösung dieser Implantation liegt unseren Simulationen nach hierbei im Bereich unterhalb eines Nanometers. Während bereits gezeigt werden konnte, dass der Extraktionsprozess mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 90 % wiederholbar funktioniert, konnten bisher noch keine

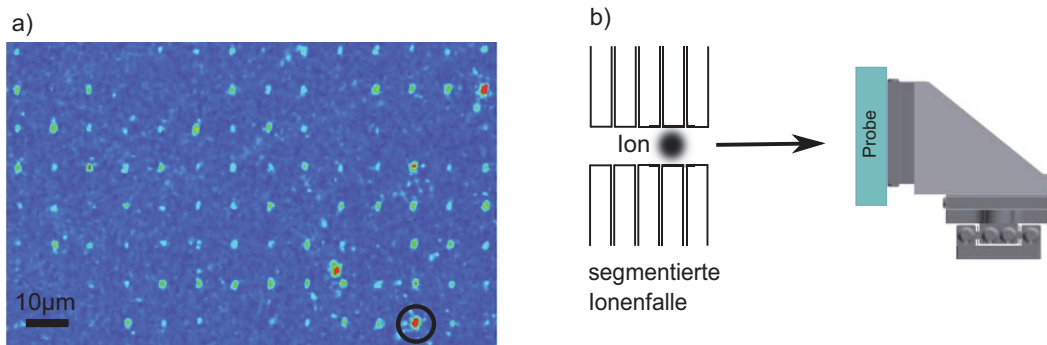


Abbildung 1.2.: a) Um ein Quantenregister aus NV Zentren zu erzeugen, müssen diese in einem Abstand weniger Nanometer voneinander entfernt positioniert werden. Es gibt keine Techniken, die dies deterministisch erlauben (Aufnahme: Meijer u. a. (2006)). Für bisherige Experimente wurden zufällig benachbarte NV Zentren zur Rate gezogen. Anhand der Fluoreszenzstärke sieht man, dass im umkreisten Punkt mehrere Farbzentren dicht bei einander liegen. b) Unsere Arbeitsgruppe hat eine Methode entwickelt, die es erstmals erlauben wird Ionen mit Nanometergenauigkeit zu positionieren. Hierfür wird eine lineare Paulfalle ausgenutzt, aus welcher Ionen einzeln in eine Probe implantiert werden können.

einzelnen implantierten Ionen im Festkörper nachgewiesen werden. Im Rahmen der vorliegenden Diplomarbeit wurde daher ein Aufbau entwickelt, mit dem einzelne Farbzentren in einem Diamant sichtbar gemacht und vermessen werden können. Als Erweiterung des bestehenden Implantationsexperiments wird es erlauben, erzeugte Farbzentren noch in-situ und unter Ultrahochvakuumbedingungen (UHV) zu untersuchen und ermöglicht so direkte Nachimplantation bei etwaigem Misserfolg. Dies ist insbesondere vor dem Hintergrund von Bedeutung, dass die Erzeugungseffizienz, d.h. der Anteil implantierter Ionen, die zu einem Farbzentrum führen, bei Aufrechterhaltung der gewünschten Auflösung lediglich im Bereich einiger Prozent liegt. Idealerweise könnte durch mehrmaliges Implantieren und anschließendes Messen des Erfolges so die Effizienz gesteigert werden. Andererseits bietet die hier genutzte Implantationstechnik den Vorteil, dass sie nicht auf die Erzeugung von Farbzentren begrenzt ist. Ein ganzer Bereich verschiedenster Ionen lässt sich laden und in unterschiedlichste Trägermaterialien extrahieren. So ist es ebenfalls eine interessante Fragestellung, Ionen in anderen Trägermaterialien nachzuweisen.

Nachweismethoden einzelner implantierter Ionen

Der Nachweis von Farbzentren erfolgt im Experiment durch die in Abb. 1.1 verdeutlichte optische **Fluoreszenzmikroskopie**. Zwei der in Teil a) dargestellten Gitterpositionen des Diamanten werden durch ein Stickstoffatom bzw. eine Fehlstelle besetzt, wobei es sich dabei, wie Kapitel 2.1.3 zeigen wird, um ein NV Zentrum handelt. Durch dessen Beleuchtung bei einer einem optischen Übergang entsprechenden Wellenlänge lässt sich dieses anregen, bevor es anschließend unter Fluoreszenz Energie abgibt. Da dieser Prozess im an sich transparenten Diamant nur an Farbzentren stattfindet, gibt das so emittierte Licht direkt Information über deren Positionen preis. Rasterndes Aufnehmen der Fluoreszenz erlaubt so eine Bildaufnahme, wie in Teil b) der Abb. 1.1 gezeigt. Die roten Bereiche heben sich durch höhere Lichtemission vom blauen Untergrund ab, sie zeigen Farbzentren. Für sie eignet sich die Fluoreszenzmikroskopie als Nachweismethode aufgrund ihrer einfachen Realisierbarkeit hervorragend. Obwohl die Anregungswellenlänge zu einer Beugungsbegrenzung im Bereich einiger Hundert Nanometer führt, können atomare Defekte (die Farbzentren) aufgenommen werden. Jüngst aufgekommene Techniken der optischen Fluoreszenzmikroskopie erlauben sogar Aufnahmen mit deutlich unterhalb der Beugungsgrenze liegenden Auflösungen, wobei zehn Nanometer bereits unterschritten wurden (Rittweger u. a., 2009). Eine Aufnahme eines solchen Verfahrens, der STED Mikroskopie², zeigt Abb. 1.3 (Rittweger u. a., 2009). Ein dem Anregungslicht überlagerter Laser wird hier genutzt um durch stimulierte Emission gezielt Fluoreszenz zu unterdrücken, wodurch in dieser Aufnahme Farbzentren in Diamant mit einer Breite von 16 nm dargestellt und ihre Positionen innerhalb der Fokalebene mit der Präzision eines Angströms bestimmt werden konnten.

Zum Nachweis anderer, mittels Einzelionen-Implantation erzeugbarer Defekte eignet sich die Fluoreszenzmikroskopie hingegen im Allgemeinen nicht. Sie ist auf die Detektion innerhalb einer optischen Bandlücke im Trägermaterial emittierender Defekte beschränkt. Hierfür lassen sich jedoch Methoden der Elektronen-Mikroskopie (EM) bzw. der **Elektronen-Transmissions-Mikroskopie** (TEM) einerseits und der **Raster-Sonden-Mikroskopie** (Scanning-Probe-Microscopy, SPM) andererseits anwenden.

Die EM nutzt aus, dass sich mit Elektronen niedrigere (de-Broglie) Wellenlängen gegenüber sichtbarem Licht (Größenordnung 10^5) erreichen lassen, wodurch sich eine Auflösung im Bereich atomarer Abstände erzielen lässt. Ein Elektronenstrahl (mit typi-

²Stimulated Emission Depletion

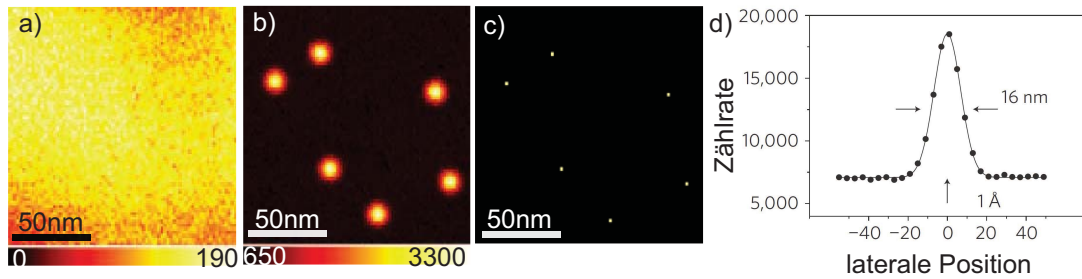


Abbildung 1.3.: a) In der Aufnahme eines konfokalen Mikroskops können einzelne Punkte aufgrund der Beugungsbegrenzung nicht mit Auflösungen unterhalb einiger hundert Nanometer aufgelöst werden. b) Durch das gezielte Ausblenden von Fluoreszenz erlaubt die STED Mikroskopie beugungsunbegrenzte Aufnahmen und das Auflösen weiterer Details. Diese Bilder einzelner Farbzentren in Diamant zeigen eine Breite (d)) im Bereich von zehn Nanometern und ihre Positionen in der Fokalebene lassen sich mit einer Präzision (c)) eines Angströms bestimmen (Aufnahmen: Rittweger u. a. (2009)).

schwerweise einigen zehn Kiloelektronenvolt Energie³) wird auf eine Probe fokussiert, in welcher verschiedene Wechselwirkungsmechanismen zwischen Material und Elektronenstrahl stattfinden. Auf diese Weise entstehen von Material, Struktur und Strahlparametern abhängige detektierbare Elektronen, wie Sekundärelektronen, charakteristische und Bremsröntgenstrahlung, Kathodenlumineszenz, Auger- oder rückgestreute Elektronen, deren Detektion bei Abrastern der Probe eine Rekonstruktion der Probenbeschaffenheit erlaubt. Um atomare Auflösung zu erzielen, reicht die Energie der entstehenden Elektronen nicht aus, es ist notwendig den primär entstehenden Elektronenstrahl bei ausreichend Energie zu betrachten. Dies erlaubt die TEM, bei der der durch die Probe transmittierte Strahl vermessen wird. Wie Teil d) der Abb. 1.4 anhand einer TEM Aufnahme an Silizium zeigt, erlaubt die Streuung am Material so Rückschlüsse über die Probenstruktur. Diese Methode bringt jedoch zwei Nachteile mit sich: Zum einen ist sie auf sehr dünne (bis zu etwa 100 nm), aufwendig präparierte Proben begrenzt. Zum anderen führt die hohe Elektronenenergie (bei TEM im Bereich 100 keV) nicht selten zu Schäden im Material.

Alternative Methoden, die im Gegensatz dazu weitestgehend nicht-destruktiv sind, bieten die verschiedensten Typen der SPM. Hierbei wird eine Messsonde über die Probe gerastert, wobei die bei charakteristischen Abständen (Größenordnung ein Nanometer

³Die dem Abschnitt über EM zugrundeliegenden Daten sind gemäß Williams u. Carter (2009).

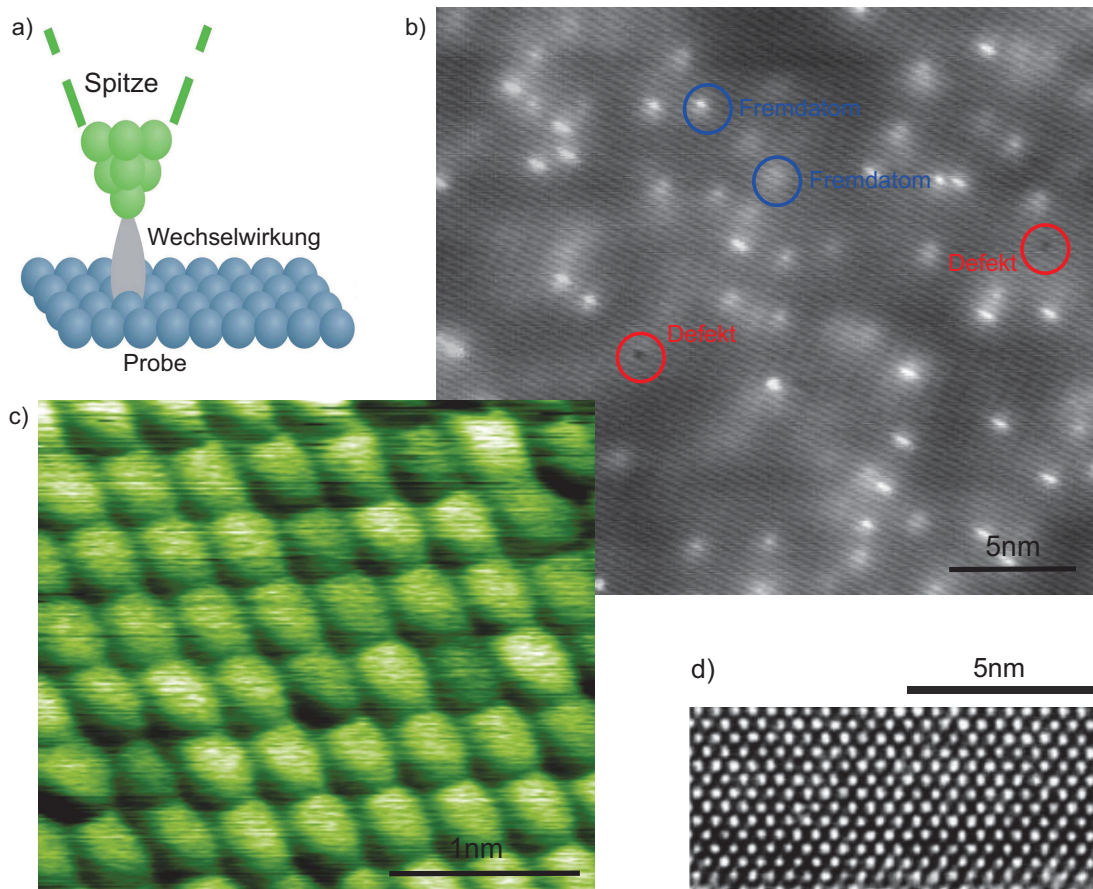


Abbildung 1.4.: Für SPM Aufnahmen wird eine Messsonde nahe der Probenoberfläche gebracht (a)), wobei durch die Wechselwirkung resultierende Signale Information über die Materialbeschaffenheiten liefern (Bild analog Waser (2005)). Im Falle der Rastertunnelmikroskopie (b)) dient der Tunnelstrom zwischen Sonde und leitender Oberfläche als Messgröße (Aufnahme entstanden am PGI, FZ Jülich: GaAs dotiert mit Zn). So lassen sich anhand der Stärke des fließenden Stroms Potenzialverläufe, selbst in Ebenen unterhalb der Oberfläche, vermessen. Anhand der Helligkeit kann man hier erkennen, dass (in rot) zwei Defekte und (in blau) zwei Fremdatome in verschiedenen Kristallschichten liegen. Bei der Rasterkraftmikroskopie (c)) wird die Auslenkung der Sonde durch Krafteinwirkung der Oberfläche vermessen (Aufnahme von M. Nimmrich, Institut für physikalische Chemie, Universität Mainz: Oberfläche eines CaF_2 Kristalls). Auch die TEM (d)) erlaubt atomare Auflösungen, wobei die Transmission eines Elektronenstrahls durch eine dünne Probe betrachtet wird (Aufnahme: Siegel, Gerthsen, KIT Institute for Micro- and Nanoelectronic Systems: Si-Substrat).

zur Oberfläche⁴) auftretenden unterschiedlichen Wechselwirkungsprozesse (mechanisch, elektrisch, magnetisch etc.) entsprechende messbare Signale (eine Kraft, einen Tunnelstrom etc.) erzeugen (Teil a) der Abb. 1.4). Das erste auf dieser Basis operierende Prinzip ist das 1981 erfundene Raster-Tunnel-Mikroskop (Scanning-Tunneling-Microscopy, STM). Es nutzt den quantenmechanischen Effekt eines Tunnelstroms aus, welcher kurz oberhalb einer leitenden Probenoberfläche auftritt (ca. ein Nanometer). Noch immer lässt sich so die höchste aller Auflösungen für SPM Techniken erreichen. Ferner lassen sich auf diese Weise, wie Teil b) der Abb. 1.4 zeigt, einzelne Defekte in Gitterstrukturen wie Fehlstellen oder Fremdatome darstellen. Ein großer Vorteil dieser Methode ist dabei, wie man Teil b) der Abbildung entnehmen kann, dass ihre Aufnahmen nicht auf die unmittelbare Oberfläche der Probe beschränkt sind, sondern auch die Einflüsse tiefer liegender Gitterpätze gemessen werden. Hier zeigt die Helligkeit der eingekreisten Fremdatome, dass sich eines einige Atomlagen tiefer im Galliumarsenid-Kristall befindet als das zweite. Der größte Vorteil jedoch ist, dass die STM detaillierte Information über die elektronische Verteilung, wie Potentialverläufe und Bandlücken, liefert. Ein Beispiel hierfür zeigt Abb. 1.5 a), in welcher sich durch den Potenzialverlauf um Kobalt-Fehlstellen die Fermi-Fläche von Kupfer vermessen lässt (Weismann u. a., 2009). Auch die elektronischen Eigenschaften atomarer Schichten, wie etwa Graphen (Meyer

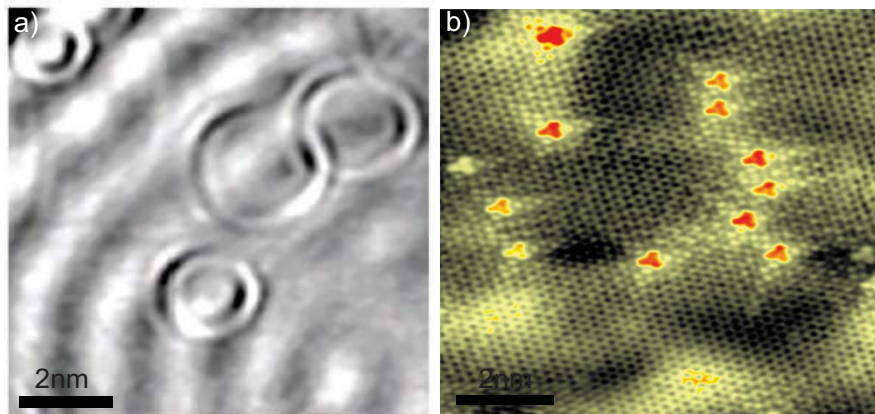


Abbildung 1.5.: a) Anhand dieser STM Aufnahme kann die Fermi-Fläche von Kupfer über einzelne Kobalt Fehlstellen vermessen werden (Aufnahme Weismann u. a. (2009)). b) Selbst in atomaren Schichten, wie hier Graphen, können mittels STM Defekte nachgewiesen werden. Diese Aufnahme zeigt 14 Dotierungen in einer auf Kupferfolie aufgetragenen Graphenschicht (Aufnahme Meyer u. a. (2007)).

⁴Die dem Abschnitt über SPM zugrundeliegenden Daten sind gemäß Waser (2005).

u. a., 2007), lassen sich auf diese Weise studieren. Eine STM Aufnahme an einer solchen Schicht zeigt Teil b) der Abb. 1.5, in welcher einzelne Dotierungen in Graphen zu erkennen sind.

Der Nachteil der STM hingegen stammt aus derselben Natur: Nur für leitende und halbleitende (oder leitend beschichtete) Materialien lässt sie sich anwenden. Eine Möglichkeit nicht leitende Materialien zu untersuchen bietet die Raster-Kraft-Mikroskope (Atomic-Force-Microscopy, AFM), bei welcher die Auslenkung einer über die Probe geführten, gefedert gehaltenen Spitze, genannt Cantilever, gemessen wird, die durch verschiedene Wechselwirkungsmechanismen mit der Probenoberfläche resultiert. Hier gibt es zahlreiche verschiedene Varianten, basierend auf unterschiedlichen Kräften (etwa van-der-Waals, elektrostatisch, magnetisch etc.) und Messmethoden. Die erreichbare Auflösung ist in vielen Fällen dabei, wie Anhand eines Kalziumfluorid-Kristalls in Teil c) der Abb. 1.4 gezeigt, ebenfalls auf der Skala atomarer Abstände, die Aufnahme jedoch auf die unmittelbare Probenoberfläche begrenzt. Der Einschuss einzelner Ionen in einen Festkörper wird jedoch stets auch mit der direkten Oberfläche einer Probe wechselwirken, selbst wenn das implantierte Ion erst in tieferen Schichten zum Stillstand kommen mag. Dies erlaubt das Nutzen der AFM zur Detektion einzelner, implantierter Ionen, weshalb im Rahmen dieser Diplomarbeit ein Weg angestoßen wurde, auf dessen Basis implantierte Ionen durch AFM nachweisbar sind.

Zunächst jedoch wird die Arbeit sich den NV Zentren, als vielversprechendste Festkörperquantensysteme widmen. In Kapitel 2.1 wird hierfür erst auf Diamant als deren Trägermaterial, dann auf ihre Erzeugung mittels Ionenimplantation und dabei auftretende Schwierigkeiten eingegangen. Es folgt darauf eine Darstellung der Eigenschaften des NV Zentrums selbst und deren Nutzbarkeit zur Quanteninformation. Im Anschluss soll ein Überblick über die Einzelionenquelle auf Basis einer Ionenfalle gegeben werden. Um die Schritte vom Fangen und Implantieren einzelner Ionen bis hin zu deren Detektion zu erläutern, wird die Arbeit in Kapitel 2.3 zunächst das Gesamtexperiment vorstellen und eine Zusammenfassung der wichtigsten Grundlagen bieten. Dabei sind die Falle und das Extraktionsprinzip selbst in vorhergehenden Arbeiten bereits sehr ausführlich beschrieben, weshalb diese Arbeit lediglich einen Überblick über die wichtigsten Aspekte geben und für Detailfragen an den entsprechenden Stellen auf jene Literatur verweisen wird.

Kerngegenstand dieser Arbeit ist eine zur Implantation und Vermessung konstruierte UHV Kammer, hier im Folgenden meist Detektionskammer genannt, welcher sich Ka-

pitel 3 widmet. Hier wird die Konstruktion und die Funktionsweise dieser Apparatur beschrieben, bevor in Kapitel 4 daran durchgeführte Messungen vorgestellt werden. Hierbei konnte insbesondere ein einzelnes Farbzentrum nachgewiesen (Kapitel 4.3) und gezeigt werden, dass auch unter UHV Bedingungen keine Beeinträchtigung der Messgenauigkeit in Kauf genommen werden muss (Kapitel 4.6).

Als alternative Nachweismethode wird dann in Kapitel 5 ein Verfahren vorgestellt, mit dem sich einzeln implantierte Ionen mittels eines AFMs untersuchen lassen. Es wird ein Weg aufgezeigt, der es erlaubt, eine Implantationsstelle derart zu markieren, dass sie sich im AFM wiederfinden lässt. Ohne Aufrechterhaltung einer besonderen Schutzatmosphäre wird man die Probe anschließend zum Messplatz transportieren und dort die einzeln implantierten Defekte vermessen können, wobei eine Methode gefunden wurde Einschränkungen durch dabei entstehende Oberflächenkontamination zu verhindern.

2

Das NV Zentrum und seine Erzeugung

Im Rahmen dieses Kapitels soll das Farbzentrum, im Speziellen das Stickstoff-Fehlstellen Farbzentrum (NV), und dessen für die Quanteninformation nützlichen Eigenschaften vorgestellt werden. Hierzu wird zunächst Diamant als Trägermaterial verschiedener Farbzentren betrachtet, bevor die Erzeugung von Farbzentren mittels Ionenimplantation behandelt wird. Insbesondere auch die dabei auftretenden Hürden werden aufgezeigt. Die Eigenschaften des NV Zentrums und deren Anwendbarkeit für die Quanteninformation schließen sich darauffolgend an. Um die Nutzbarkeit einer Ionenfalle als Einzelionenquelle zu beschreiben, wird im sich anschließenden Abschnitte ein Überblick über das Gesamtexperiment gegeben. Hierzu wird die Anordnung des aus einer Fallen- und einer Detektorkammer bestehenden Aufbaus skizziert, bevor im letzten Abschnitte dieses Kapitels die Funktionsweise des Implantationsprozesses erläutert wird.

2.1. Das NV Zentrum in Diamant

Es sind nicht selten die Defekte innerhalb eines Festkörpers, die dessen elektrische, optische oder mechanische Eigenschaften maßgeblich bestimmen. Einige Defekte sind optisch aktiv, was die Absorptions- und Emissionsspektren des Festkörpers zu ändern vermag. Sie werden daher Farbzentren genannt. Allein im Diamant sind weit über 100 lumineszente Defekte bekannt (Zaitsev, 2001), von denen bisher zahlreiche durch Messungen, wie etwa optischer Spektroskopie, untersucht wurden. Eines davon ist das NV Zentrum. Verschiedenste Messmethoden wie optisches Lochbrennen, optische Echo-Spektroskopie oder optisch detektierter Magnetresonanz wurden und werden zu dessen Untersuchung angewandt (Martin u. a. (2000), Rand u. a. (1994), van Oort u. a. (1990)). Unter einigen weiteren Farbzentren in Diamant zeichnet es sich durch verschiedene für

die Quanteninformation sehr nützliche Eigenschaften aus, weshalb es neben dem Silizium Fehlstellenzentrum Koehl u. a. (2011) und dem sogenannten NE8 Zentrum als eine der drei prominentesten Einzelphotonenquellen bei Raumtemperatur gilt (Pezzagna u. a., 2011). In diesem Abschnitt werden diese Eigenschaften zusammengefasst. Zuvor soll ein Überblick über Charakteristika von Diamant und über die Erzeugung von Farbzentren erfolgen.

An dieser Stelle möchte ich erwähnen, dass es sehr verständliche und doch zugleich detailreiche Literatur zu den Eigenschaften des NV Zentrums und dessen Anwendung zur Quanteninformationsverarbeitung in Diamant gibt. Interessiert man sich für über diese Arbeit hinaus gehende Details, so empfehle ich in dieser Reihenfolge das Studium von Wrachtrup u. Jelezko (2006) und Neumann u. a. (2010), anhand derer sich, sofern nicht anderweitig kenntlich gemacht, auch die folgenden Abschnitte orientieren. Erstere fassen die angewandten Techniken zur Manipulation und Auslese von Qubits auf NV Basis zusammen, während zweitere die Realisierung eines skalierbaren Quantengatters mittels NV Zentren erläutern. Pezzagna u. a. (2011) gibt zudem einen interessanten Überblick über etablierte Implantationsverfahren und dabei auftretende Probleme zur Erzeugung von optischen Defektzentren.

2.1.1. Die Eigenschaften des Diamanten

Diamant ist das härteste natürlich vorkommende Material, gleichzeitig jenes mit der höchsten Wärmeleitfähigkeit, was ihn zu einem begehrten Werkstoff in verschiedensten Industrien macht. Reiner Diamant ist unter Normalbedingungen ein perfekter Isolator, durch Dotierungen kann die Leitfähigkeit jedoch weit variiert werden. Im Jahre 2004 wurde Bor dotierter Diamant als Möglichkeit für Tieftemperatursupraleitung entdeckt (Sidorov u. a., 2005).

Abb. 2.1 zeigt die Kristallstruktur des Diamantgitters. Es handelt sich dabei um zwei gegeneinander verschobene, verschachtelte kubisch flächenzentrierte Gitter mit Basen $(0, 0, 0)$ und $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$, bestehend aus kovalent gebundenen C-Atomen. Diese tetraedrische Ausrichtung zwischen jedem C-Atom und seinen Nachbarn resultiert aus einer sp^3 -Hybridisierung der C-Atome, welche ebenso Ursache für die besondere Härte des Materials ist.

Die physikalischen Eigenschaften des Diamanten sind weitestgehend bekannt, Zaitsev (2001) ist ein gutes Nachschlagewerk für optische Aspekte und erläutert die Herstellungsverfahren für künstliche Diamanten. Eine empfehlenswerte Übersicht über die Rol-

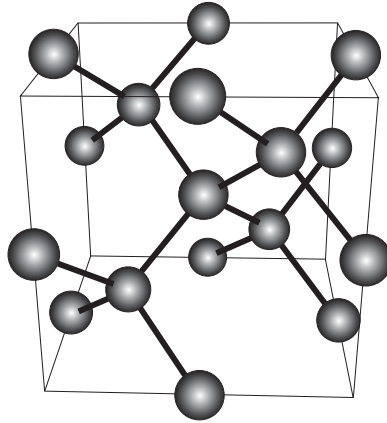


Abbildung 2.1.: Die sp^3 -Hybridisierung der C-Atome im Diamant führt zu einer kubisch flächenzentrierten Gitterstruktur mit Basis $(0, 0, 0)$ und $(\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})$ bestehend aus kovalent gebundenen C-Atomen.

le des Diamanten und dessen Anwendungen in der Photonik gibt Aharonovich u. a. (2011). Internetdatenbanken liefern Antworten auf darüber hinaus gehende Fragen. Kenntnis der folgenden Aspekte allein reicht aus, um die Eignung des Diamanten als Trägermaterial für Einzelphotonenquellen und Qubits zu sehen:

Als Resultat einer breiten Bandlücke von 5.5 eV zeigt das Absorptionsspektrum von Diamant einen sehr breiten transparenten Bereich, der vom tiefen Ultraviolett bis hin zum fernen Infrarot reicht. Während reiner Diamant daher farblos erscheint und Licht dieses Wellenlängenbereiches nicht absorbiert, lassen sich zahlreiche Farbzentren in diesem Bereich anregen und emittieren in selbigen. Zum einen verdanken daher farbige Diamanten ihre Farbe zahlreicher dieser chemischen Verunreinigungen, zum anderen erlaubt Diamant so das optische Adressieren selbiger Defekte. Die Photoemission des größten Teils bekannter Farbzentren in Diamant ist selbst bei Normalbedingungen sowie Temperaturen von weit oberhalb 500°C stabil und zeigt eine hohe Stabilität gegen Bleichen durch Photoemission, -absorption. Dies erleichtert den experimentellen Aufwand erheblich. Es lassen sich heute hochreine Diamanten mit Verunreinigungen weniger ppb¹ herstellen. Das Diamantgitter besteht dann bis auf den Anteil an ^{13}C -Kernspins lediglich aus nicht paramagnetischen Isotopen, was Kohärenzzeiten von einigen 100 µs und damit das praktische Durchführen von Quantengattern erlaubt. Balasubramanian u. a. (2009) konnte durch Reduzierung des ^{13}C -Anteils auf 0.3 % für Elektronenspins gar

¹Parts Per Billion

die kürzeste Dephasierungszeit ($T_2 = 1.8 \text{ ms}$) erreichen, die je in einem Festkörper gemessen wurde. Ein praktischer Vorteil des Diamanten als Trägermaterial für Qubits ist, dass Farbzentren durch Ionenimplantierung einzeln erzeugt und positioniert werden können. Unser Aufbau erlaubt dabei Positionierungsgenauigkeiten im Bereich eines Nanometers. Im folgenden Abschnitt soll auf herkömmliche Implantationsverfahren und generelle Probleme bei der Implantation eingegangen werden.

2.1.2. Die Erzeugung von Farbzentren

Durch Implantation von Ionen können Farbzentren im Diamant erzeugt werden. Zur Generierung eines NV Zentrums etwa, müssen Stickstoffionen in Diamant eingebracht werden, bevor weitere Prozesse (s. weiter unten) zur Erzeugung eines NV Zentrums führen können. Das Grundprinzip aller Implantationsarten ist dabei das gleiche: Ionen der gewünschten Sorte werden beschleunigt und auf den Diamanten fokussiert. Dort geben sie durch Stöße mit Kohlenstoffatomen ihre kinetische Energie ab, bis sie zur Ruhe kommen (s. Abb. 2.2 a), b)). Die Genauigkeit der Positionierung hängt dabei von verschiedenen Parametern ab. Zum einen setzt die Güte der Fokussierung des primären Ionenstrahls einen unteren Wert für die Auflösung. Die Genauigkeit der Positionierung kann die der Fokussierung nicht unterschreiten. Entscheidende Parameter sind darüber hinaus Art des Targetmaterials - in diesem Falle Diamant - und des Beschussmaterials. Auch von der Energie der Ionen beim Auftreffen auf die Diamantoberfläche hängt die effektive Positioniergenauigkeit ab. Dies ist anschaulich verständlich, als energiereichere Ionen häufiger mit C-Atomen stoßen müssen, um zur Ruhe zu kommen als weniger energiereiche Ionen. Dabei dringen sie tiefer in den Diamanten ein, andererseits erfahren sie auch einen größeren mittleren lateralen Versatz durch Streuung, die Standardabweichung der Ionen von ihrer geradlinigen Bahn vergrößert sich. Dieser Prozess wird Straggling genannt und ist in Abb. 2.2 c) gezeigt. Für Energien weniger Kiloelektronenvolt liegen sowohl axiales als auch laterales Straggling im Bereich von Nanometern. Generell gilt, dass für beliebige Energien beide Arten des Straggling, axiales und laterales, in derselben Größenordnung liegen. Für Energien unter 1 keV fällt das Straggling deutlich unter 1 nm , während es für Energien im Bereich 1 MeV bereits bei einigen 100 nm liegt². Implantation mit Genauigkeit auf einer Skala von Nanometern ist damit nur mit

²Die zugrunde liegenden Daten wurden mit Hilfe von SRIM, einem frei zugänglichen Softwarepaket, berechnet. Dieses kann die Reichweiten, sowie das Straggling von Ionen in Festkörpern, nicht jedoch das später genannte Channeling, auf Basis von Monte-Carlo-Simulationen berechnen. Software verfügbar unter <http://SRIM.org>, Stand vom 01.12.2011.

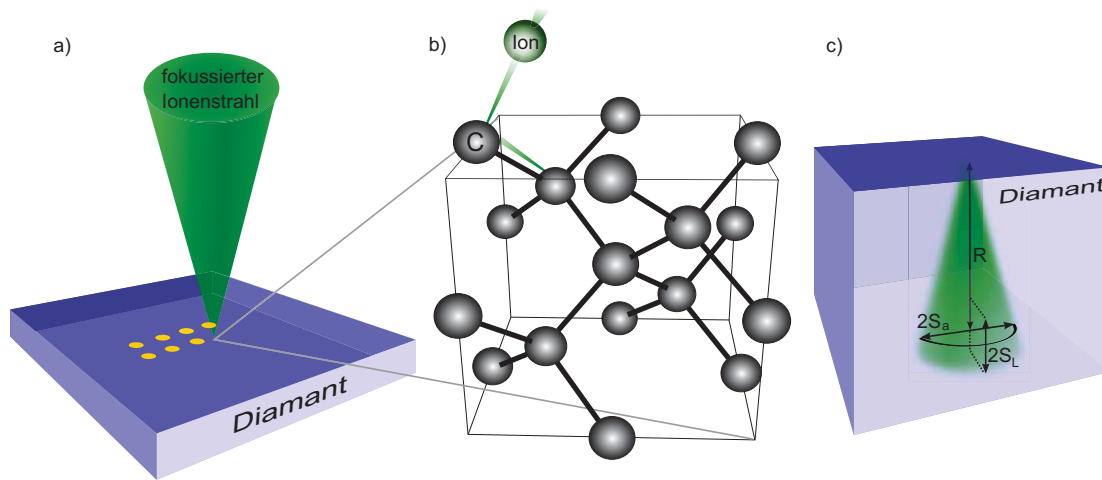


Abbildung 2.2.: Die Implantation in Diamant basiert auf Fokussierung eines Ionenstrahl auf den Diamanten, a). Die eindringenden Ionen wechselwirken mit dem Diamantgitter, bis sie zur Ruhe gekommen sind, b), wobei sie entlang ihres Weges abhängig von Typ und Energie verschieden stark Defekte erzeugen. Die mittlere Reichweite R , axiales, S_a , und laterales, S_L , Straggling hängen sehr stark von der Einschussenergie ab, c). Für 0.5, 1, 5 und 10 keV betragen sie etwa (1.5, 0.5, 0.5), (2, 1, 1), (8, 3, 3) und (15, 5, 5) nm, weshalb sich zur Positionierung auf nm-Skala ausschließlich niedrig energetisches Implantieren eignet.

niedriger Einschussenergie möglich. Unser Implantationsaufbau erlaubt ohne weiteres Energien im Bereich einiger eV bis hin zu einigen keV. Bei niedrigerer Einschussenergie sitzen die Farbzentren allerdings auch näher an der Oberfläche des Diamanten und spüren somit ggf. ein durch die Oberflächenterminierung verändertes Umfeld. Während dies im einfachsten Falle eher unerwünscht ist, gibt es (Hauf u. a. (2011)) jedoch auch sehr interessante Anwendungen, die sich genau diesen Effekt der Oberflächenterminierung zu Nutzen machen, um erzeugten Farbzentren gewünschte Eigenschaften beizufügen. Ein zweiter Effekt, der gerade für Ionenenergien unterhalb 100 keV die Positionierungsgenauigkeit stark negativ beeinflussen kann, ist sogenanntes Channeling (zu Deutsch Gitterführungseffekt). Abhängig von der Orientierung zwischen Ionenflugbahn und Kristallachsen kann sich das Ion entlang Bahnen bewegen, auf denen der Zusammenstoß mit einem Gitteratom unwahrscheinlich ist. Die Eindringtiefe ist dann erheblich größer, wobei das Ausmaß des Effektes theoretisch schwer vorhersagbar ist. Der übliche Ausweg zur Unterdrückung des Channelings ist die Wahl einer Ausrichtung des Diamanten, bei der alle Kristallachsen einen Winkel, i.d.R. 7° , zur Ionenflugbahn einschließen.

Eines der größten Probleme herkömmlicher Implantationsarten ist die Kontrolle des Ionenflusses. Gerade für niedrige Flüsse ist es kaum möglich, diesen exakt zu bestimmen und der relative Fehler fällt stärker ins Gewicht. Implantationsdosen können so nur in einem statistischen Mittel erreicht werden, während zur Erzeugung vieler Anwendung, wie etwa von Quantenregistern, eine deterministische Erzeugung unabdingbar ist. Unser Aufbau erlaubt als bisher einziger das gezielte Extrahieren einer vorher bestimmbar Anzahl an Ionen mit einer Effizienz von 90 % (Schnitzler u. a., 2009) und damit das deterministische Implantieren.

Um die implantierten Ionen in Farbzentren zu überführen, ist sogenanntes Annealing (zu Deutsch Ausheilen) notwendig. Hierzu wird der Diamant aufgeheizt, wobei verschiedene, noch weitgehend unverstandene physikalische Prozesse innerhalb des Diamanten stattfinden. Die Annahmen sind, dass Zwischengitteratome bereits bei niedrigen Temperaturen mobil werden, während bei Temperaturen von etwa 600° C Gitterfehlstellen beginnen durch das Gitter zu wandern. Auf diese Weise ist es möglich zum einen implantierte Ionen auf einen Gitterplatz zu bewegen, andererseits Fehlstellen durch den Diamanten zu verschieben. Bei Temperaturen unterhalb etwa 2000° C sind Fremdatome wie etwa Stickstoff auf einem Gitterplatz stabil gegen langreichweitiges Wandern, bewegen sich also nicht weiter im Gitter als ein paar Gitterplätze, sofern sie eine solche Position erreicht haben. Gitterfehlstellen andererseits verspüren oftmals ein attraktives Potential in der Nähe eines solchen Fremdatoms, weshalb eine Fehlstelle etwa zu einem implantierten Stickstoffatom während des Annealings wandert und so ein NV-Farbzentrum gebildet wird. Eine große Problematik dabei ist die erhaltene Konversionseffizienz, d.h. der Anteil der implantierten Ionen, aus denen nach dem Annealing erfolgreich ein Farbzentrum entstanden ist. Es gibt Studien, die sich damit beschäftigen die genauen Hintergründe, die zur Erzeugung eines Farbzentrums führen zu erforschen und so die Konversionseffizienz zu steigern, etwa Pezzagna u. a. (2010a). Dieser ist Abb. 2.3 entnommen, in welcher die Konversionseffizienz durch ^{15}N Beschuss erzeugter NV Zentren dargestellt ist. Man sieht, dass für Energien im Bereich einiger keV (welche zur Implantation mit Genauigkeit im Nanometerbereich nicht überschritten werden dürfen) die Effizienz sehr gering ist. So liegt sie unterhalb von 5 keV etwa bei weniger als einem Prozent. Für steigende Energien nimmt auch die Effizienz zu, bis sie bei etwa 50 % in Sättigung geht. Eine Ursache hierfür ist der geringere Abstand zur Oberfläche der Ionen niedrigerer Energie. Während des Annealings können Fehlstellen in der Nähe der Oberfläche durch deren Terminierung zerstört werden. Als zweite Ursache für den Anstieg konnte eine höhere Anzahl erzeugter Fehlstellen pro implantiertem Ion ge-

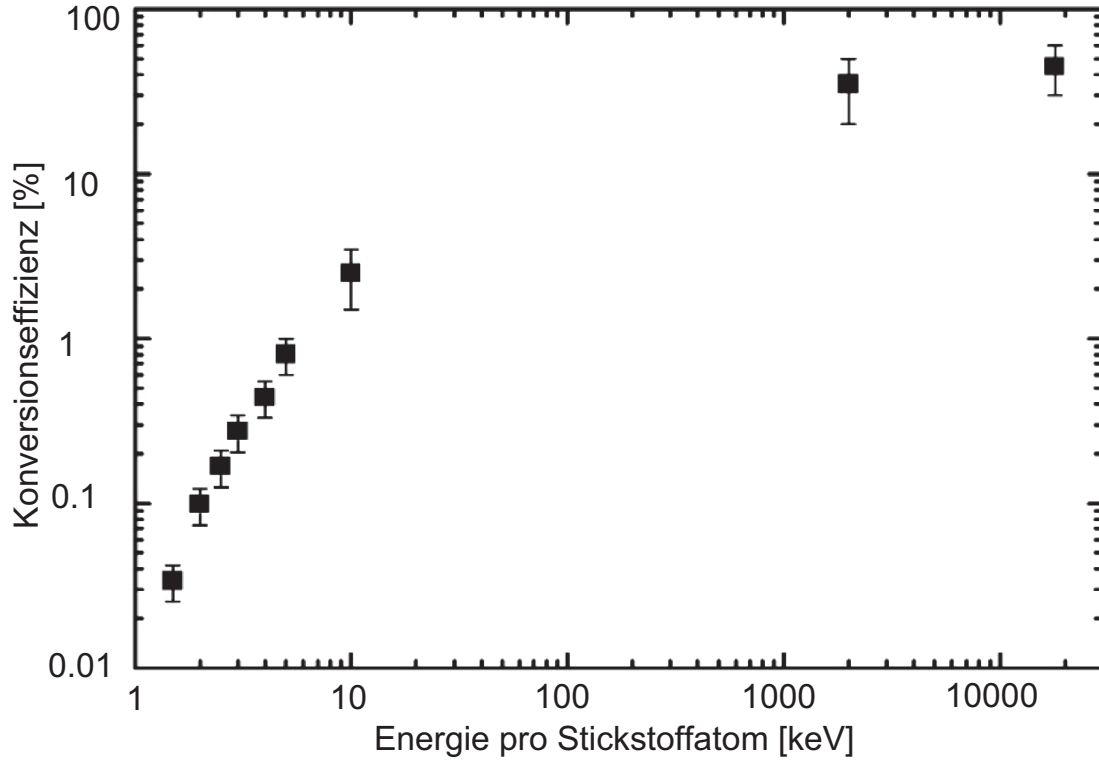


Abbildung 2.3.: Um NV Zentren mit einer Auflösung im Bereich von Nanometern zu erzeugen darf die Implantationsenergie nur im Bereich weniger keV liegen. Straggling führt ansonsten zu einer größeren Streuung. Die Konversionseffizienz von Farbzentren - hier durch Beschuss mit ^{15}N ist in diesem Bereich sehr gering. Für Energien unterhalb 5 keV liegt sie unterhalb eines Prozents (Messwerte von Pezzagna u. a. (2010a)).

funden werden. Diese zeigt einen ähnlichen Verlauf, beginnend bei etwa zehn erzeugten Fehlstellen für ein 1 keV Ion und einer Sättigung bei ungefähr 1000 erzeugten Fehlstellen pro Ion. Dies zeigt, dass durch bewusstes Erhöhen der Fehlstellenzahl eine Verbesserung der Effizienz erreicht werden kann. Ansätze basieren auf dem Beschuss der Probe mit C Ionen, durch Elektronen- oder harter Röntgenstrahlung. Deutliche Erfolge konnten jüngst Naydenov u. a. (2010) zeigen, wobei durch nachträgliches Implantieren von Kohlenstoff die Konversionseffizienz um 50 % gesteigert werden konnte. Dennoch bleibt sie ein limitierender Faktor bei der Erzeugung von NV Zentren, deren Eigenschaften im folgenden Abschnitt genauer erläutert werden.

2.1.3. Die Eigenschaften des NV Zentrums

Wie im vorangehenden Abschnitt schon deutlich geworden ist, besteht das NV Zentrum, daher der Name, aus einem Stickstoffatom N und einer Fehlstelle V (Vacancy). Das N Atom nimmt dabei innerhalb des Diamantgitters den Gitterplatz eines Kohlenstoffatoms C ein. Die Fehlstelle V befindet sich auf einer dessen nächsten Nachbarpositionen, wie Abb. 2.4, eine Darstellung der Gitterstruktur des NV Zentrums, zeigt.

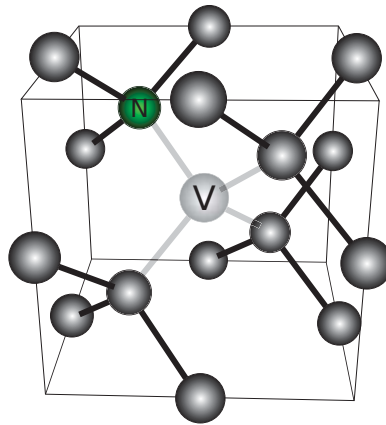


Abbildung 2.4.: Das NV Zentrum besteht aus einem Stickstoffatom N, welches innerhalb des Diamantgitters den Gitterplatz eines Kohlenstoffatoms C einnimmt. Auf der nächsten Nachbarposition befindet sich eine Fehlstelle V.

Ist von NV Zentrum die Rede, bezieht man sich meist auf NV^- , den negativ geladenen Zustand des Zentrums. Dieses zeigt, wie wir weiter unten in diesem Abschnitt sehen werden, jene Eigenschaften, welche für die Nutzung als Qubit und Einzelphotonenquelle ausgenutzt werden können. Tatsächlich existieren aber noch weitere Ladungszustände des NV Zentrums. Die genauen Einflüsse und Voraussetzungen für die Stabilität der unterschiedlichen Formen werfen dabei noch einige Rätsel auf und erst dieses Jahr konnten Waldherr u. a. (2011a) zeigen, dass unter Normalbedingungen entgegen bisheriger Annahmen NV^- nicht permanent in diesem Zustand vorliegt, sondern ein statistisches Schwanken zwischen den Zuständen NV^- und NV^0 stattfindet. Dabei wurde an einem einzelnen NV in 70 % der Zeit der Zustand NV^- , in 30 % der ungeladene Zustand NV^0 beobachtet. Bisherige Theorien gingen von einer Stabilität der einzelnen Zustände aus, wobei die Fermikante die Verteilung bestimmte (Hauf u. a. (2011)). Die beschriebenen Beobachtungen wurden an einzelnen NV Zentren im Diamant gemacht und weitere Messungen zeigen, dass auch der Abstand zur Oberfläche sich auf die Verteilung aus-

wirkt. In Nanodiamanten etwa (der Durchmesser des gesamten Diamanten beträgt hier typischerweise einige zehn Nanometer) scheint obige Beobachtung nicht zu gelten und jeder NV Zustand für sich stabil. Es gibt Messungen, wie etwa Zheng (2010), in denen an Nanodiamantproben durch photolumineszente Vorgänge der Ladungszustand manipuliert wurde. Die maßgebliche Beobachtung ist hier, dass es möglich scheint das NV^- zu ionisieren und so in das ungeladene NV^0 umzuwandeln. Das Elektron wird dabei von umliegenden Defekten oder an der Oberfläche aufgenommen und in vielen Fällen lässt sich ein späteres Rekombinieren zum NV^- nach einigen Stunden feststellen. Auch gibt es Messungen wie Hauf u. a. (2011), in denen gezielte Manipulation der Oberflächenterminierung zur Einflussnahme auf den Ladungszustand des Zentrums ausgenutzt wird. Während das $\frac{70}{30}$ -Verhältnis der Ladungszustände an natürlichen Farbzentren bestimmt wurde, stellt man fest, dass es im Falle implantierter Farbzentren abhängig von der Einschussenergie geringer ist³. Durch die während der Implantation entstehenden Defekte kann das Ladungselektron des NV^- leichter ionisiert und an Fehlstellen aufgenommen werden. Die Erzeugung eines möglichst hohen Anteils an NV^- und das genaue Verständnis der zugrundeliegenden Effekte ist Gegenstand aktueller Forschung. Es eröffnet Wege wie das Ausnutzen der verschiedenen Zustände zur Erzeugung beugungsunbegrenzter Fluoreszenzaufnahmen (Han u. a., 2010) oder das Definieren eines Qubits auf Basis des NV^0 Kernspins (Waldherr u. a., 2011a). Vielversprechenster Kandidat bleibt jedoch das NV^- und auch wurden bereits experimentelle Methoden entwickelt, die es erlauben den Zustand auszulesen und so die Verweilzeit im ungewünschten NV^0 Zustand für Quantenoperationen auszublenden (Waldherr u. a., 2011b).

Das Fluoreszenzspektrum eines einzelnen NV Zentrums zeigt Abb. 2.5. Es wurde mit einer Anregungswellenlänge von 500 nm bei einer Leistung von etwa 300 μ W an einem einzelnen NV Zentrum bei Normalbedingungen aufgenommen⁴. Zu sehen sind neben einem breiten Spektrum zwei einzelne Peaks bei den Wellenlängen 575 nm und 638 nm. Sie entsprechen den Zero-Phonon-Lines (ZPL) der beiden Zustände NV^0 bzw. NV^- , die aus dem optischen Übergang vom angeregten (3E -)Zustand in den Grundzustand (3A) ohne phononische Wechselwirkung mit dem Diamantgitter resultieren. Die Erklärung

³Messungen von Boris Naydenov, Institut für Quantenoptik, Universität Ulm, bisher unveröffentlicht.

⁴Mit freundlicher Genehmigung von Nabeel Aslam, 3. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, wobei es Teil einer sehr vielversprechenden Messreihe zur Bestimmung des oben beschriebenen $\frac{NV^-}{NV^0}$ -Verhältnisses ist. Bei verschiedenen Anregungswellenlängen werden Sättigungsverhalten und Spektren des Farbzentrens bestimmt, wobei sie Aussagen über die zugrundeliegenden Vorgänge erlauben werden. Derzeit liegt noch keine Veröffentlichung hierzu vor.

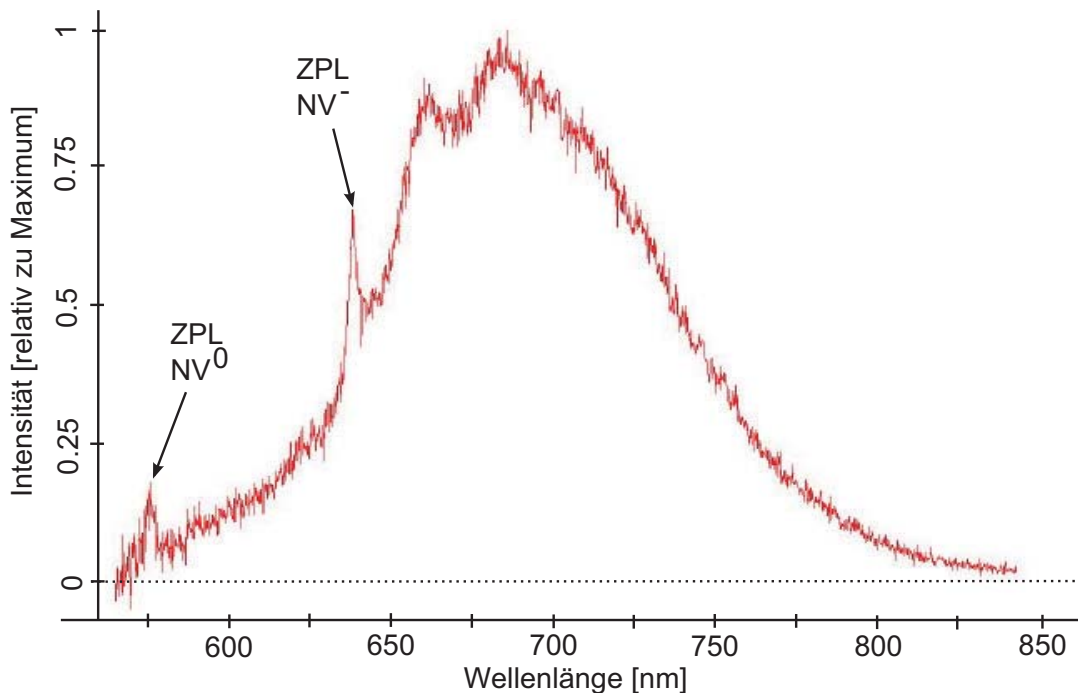
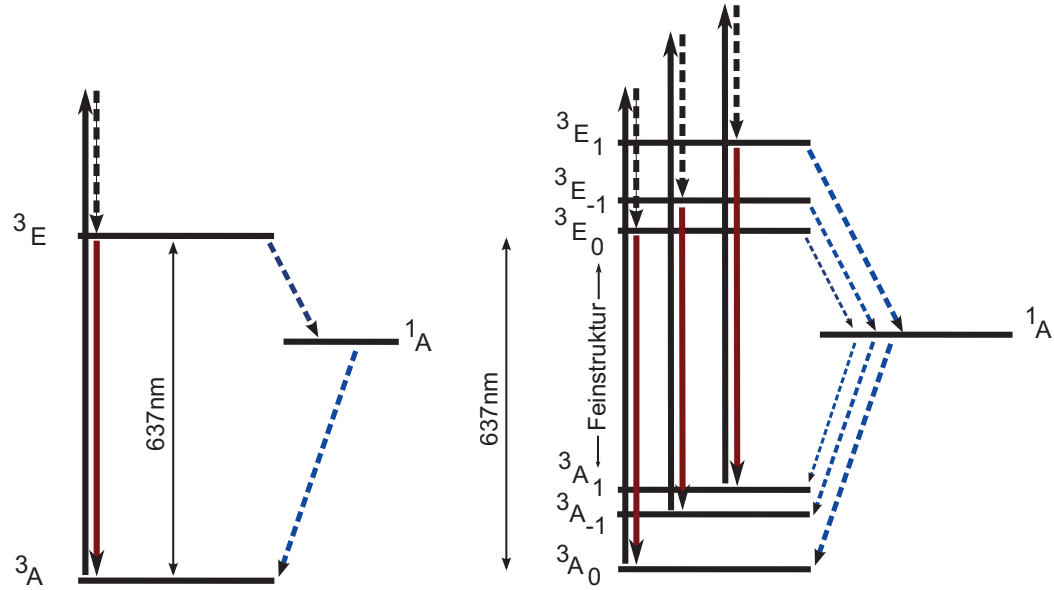


Abbildung 2.5.: Das Fluoreszenzspektrum wurde an einem einzelnen NV mit einer Anregungswellenlänge von 500 nm aufgenommen und zeigt einen breiten Bereich von Übergängen, der sich über mehr als 200 nm erstreckt. Dies ist Resultat phononischer Energieabgabe an das Diamantgitter. Zudem sind zwei Zero Phonon Lines, zugehörigen zu den Ladungszuständen NV^0 und NV^- zu sehen (Aufnahme: N. Aslam, 3. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart).

des Energietermschemas folgt weiter unten in diesem Abschnitt. Es lässt sich damit sehr deutlich sehen, dass beide Zustände zu einem einzigen Fluoreszenzspektrum beitragen. Zu größeren Wellenlängen der ZPLs gegenüber verschoben zeigt sich ein breites Spektrum, welches Resultat phononischer Energieabgabe an das Diamantgitter vor anschließendem optischen Übergang zwischen den beiden oben genannten Zuständen ist. Der größte Teil des Fluoreszenzlichts wird in dieses phononische Spektrum emittiert, während der Beitrag der ZPLs selbst nur einige wenige Prozent beträgt. Nur zu erahnen ist in Abb. 2.5 die ebenso auftretende Anti-Stokes Luminiszenz bei Wellenlängen kleiner als die jeweiligen ZPLs.



(a) Einfaches Drei-Niveau Termschema des NV. Es zeigt einen Grundzustand 3A , von dem aus optisch in einen stark phononisch verbreiterten angeregten Zustand 3E gepumpt werden kann. Von dort kann das System fluoreszierend (roter Pfeil) in 3A zurückfallen oder strahlungslos (blauer Pfeil) in einen metastabilen Zustand 1A übergehen (analog Waldherr u. a. (2011b)).

(b) Drei-Niveau Termschema des NV mit Feinstrukturaufspaltung. Die Pfeildicken skizzieren die Übergangsraten. Die Zustände 3A und 3E sind durch Feinstrukturwechselwirkung in Triplets aufgespalten, 1A ist ein Singulett. Übergänge in den metastabilen Zustand sind für die Spinprojektionen ± 1 etwa 10^3 mal Wahrscheinlicher als für die Projektion 0, wodurch es zu einer Spinpolarisation nach einigen Pumpzyklen kommt.

Abbildung 2.6.: Energietermschema des NV mit und ohne Feinstrukturaufspaltung

Das Energietermschema des NV zeigt Abb. 2.6(a). Es handelt sich hierbei um ein vereinfachtes Drei-Niveau-Modell, mit dessen Hilfe sich die Eigenschaften des NV^- weitgehend beschreiben lassen. Die tatsächliche Struktur ist um ein Vielfaches komplizierter und viele Aspekte sind noch unbekannt. Ebenso grenzt sich das NV^0 von diesem Modell ab, Messungen der $g^{(2)}$ -Korrelationsfunktionen deuten darauf hin, dass die Näherung durch ein Zweiniveau System das Verhalten hier besser deutet. Ich möchte in Abschnitt 4.3 darauf zurück kommen und werde mich, sofern nicht anders vermerkt, unter NV für den weiteren Verlauf auf NV^- beziehen.

Zu sehen ist ein Grundniveau, 3A , von dem aus durch resonantes Treiben ein optischer Übergang in das angeregte Niveau 3E stattfinden kann. Tatsächlich handelt es sich bei Raumtemperatur hierbei um ein stark phononisch verbreitertes Band und ein gan-

2. Das NV Zentrum und seine Erzeugung

zer Wellenlängenbereich lässt sich zum Treiben des Übergangs verwenden. Von ${}^3\text{E}$ aus kann das System zurück in den Grundzustand übergehen, meist nach Energieabgabe in Gitterschwingungen, wodurch das oben beschriebene, dem dem Anregungsspektrum gegenüber rot verschobene Fluoreszenzspektrum zu beobachten ist. Mit Hilfe dieses emittierten Lichtes lässt sich das Farbzentrum, wie für unsere Messungen der Fall, detektieren. Von ${}^3\text{E}$ aus existiert jedoch auch ein weiterer, strahlungsloser Übergang in ein metastabiles Niveau ${}^1\text{A}$. Die Existenz dieses Zustands galt lange als umstritten, Experimente wie optisches Lochbrennen von Martin u. a. (2000) deuten jedoch stark auf einen solchen Zustand hin. Da zahlreiche weitere Messungen, wie etwa das unten beschriebene Zustandsauslesen des Spins, ebenfalls durch Einbindung dieses Niveaus erklärbar sind, geht man heute von dessen Existenz aus. Details über die Anzahl metastabiler Niveaus sind weitestgehend unbekannt. Von ${}^1\text{A}$ aus kann das System über einen weiteren strahlungslosen Übergang zurück in ${}^3\text{A}$ übergehen.

Zur Erklärung der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente reicht dieses Modell aus. Zum Verständnis der Nutzung des NV Zentrums als Qubit muss es jedoch um einige weitere Aspekte erweitert werden. An dieser Stelle möchte ich einen kurzen Abriss der wichtigsten Aspekte liefern, die zur Durchführung von Quanteninformation mittels eines NV Zentrums notwendig sind.

Abb. 2.6(b) zeigt hierfür ein verfeinertes Energietermschema. Zu sehen ist, dass sowohl der ${}^3\text{A}$ als auch der ${}^3\text{E}$ Zustand in Triplets aufspalten, der ${}^1\text{A}$ Zustand ist ein Singulet. Ohne äußeres Magnetfeld sind dabei die Zustände ${}^3\text{A}_{m_S=+1}$ und ${}^3\text{A}_{m_S=-1}$ des Grundzustands entartet und um 2.88 GHz gegenüber ${}^3\text{A}_{m_S=0}$ verschoben. Durch Spin-Spin Wechselwirkung ist diese Entartung aufgehoben. Von jedem der drei Unterzustände sind optische Übergänge in die entsprechenden Unterzustände des ${}^3\text{E}$ Niveaus erlaubt, wobei die Übergänge spinerhaltend sind. Fluoreszenz kann nun auf gleichem Wege spinerhaltend zwischen den einzelnen Unterzuständen von ${}^3\text{E}$ und ${}^3\text{A}$ stattfinden. Der Übergang von ${}^3\text{E}$ in das Singulet-Niveau ${}^1\text{A}$ andererseits ist nicht spinerhaltend, strahlungslos und die Übergangsraten sind um etwa drei Größenordnungen höher für die Unterzustände ${}^3\text{E}_{m_S=\pm 1}$, als sie es für ${}^3\text{E}_{m_S=0}$ sind. Der Übergang von ${}^1\text{A}$ nach ${}^3\text{A}$ findet ebenfalls strahlungslos jedoch annähernd isotrop, mit leichter Bevorzugung in den Unterzustand $m_S = 0$ statt. So kommt es, dass durch den metastabilen Zustand nach einigen Pumpzyklen eine Spinpolarisation im Grundzustand erzeugt wird, bei der über 80 % der Spins im $m_S = 0$ Zustand vorliegen.

Andererseits liegt die Lebensdauer des metastabilen Zustands bei einigen hundert Na-

nosekunden, die des angeregten bei einigen zehn Nanosekunden. Da die $m_S = \pm 1$ Spins deutlich häufiger im metastabilen Zustand während kontinuierlichen Pumpens vorliegen, misst man so eine niedrigere Fluoreszenzintensität für $m_S = \pm 1$ gegenüber $m_S = 0$. Dies erlaubt es nun, das System im Zustand $m_S = 0$ zu präparieren, Operationen durchzuführen und zustandsselektiv über Fluoreszenzintensitätsmessungen auszulesen. Man hat also ein Qubit vorliegen, welches man beschreiben und auslesen kann.

Um aus einem solchen einzelnen Qubit nun ein Register zu erzeugen gibt es verschiedene Ansätze. Einer ist das Ausnutzen der Hyperfeinwechselwirkung des Spins mit den Kernspins umliegender C^{13} -Atome. Diese Methode wurde bereits zur Erzeugung eines Quanteregisters angewandt (Dutt u. a., 2007), ist jedoch in ihrer Skalierbarkeit begrenzt. Eine andere Methode, frei von Skalierbarkeitsproblemen, ist es die Spinzustände einzelner, benachbarter NV Zentren zu koppeln (Neumann u. a., 2010). Auf Längenskalen im Bereich einiger weniger Nanometer reicht die magnetische Dipol-Dipol Kopplung aus um diese Aufgabe zu erfüllen. Andererseits können mit nicht beugungsbegrenzten optischen Fluoreszenzmikroskopieverfahren (wie STED (Rittweger u. a., 2009), s. auch Kapitel 1, Abb. 1.3) die Quantenbits selbst bei diesem Abstand (unterhalb zehn Nanometer) noch einzeln adressiert und ausgelesen werden. So können frei skalierbare Quantenregister erzeugt werden. Das einzige bisher ungelöste Problem dabei ist die dementsprechend genaue, deterministische Positionierung der Farbzentren. Mit Hilfe des im Folgenden vorgestellten Experimentaufbaus jedoch lässt sich dieses erstmals lösen.

2.2. Überblick über das Gesamtexperiment

Der Kernbaustein des experimentellen Aufbaus der Einzelionenquelle ist eine lineare, segmentierte Paulfalle, welche es erlaubt einzelne Ionen ganz unterschiedlicher Spezies zu fangen, zu kühlen, zu vermessen, zu isolieren und mit minimaler, durch das Heisenberg Limit begrenzter Emittanz zu extrahieren (Schnitzler u. a., 2009). Die so extrahierten Ionen können durch Fokussieren mittels geeigneter Ionenoptik in beliebige Festkörper implantiert werden (Fickler u. a. (2009), Schnitzler u. a. (2010)).

Die beiden elementaren Bestandteile im Experiment, die Fallenkammer und die Detektorkammer, sind in Abb. 2.7, einem während des Zusammenbaus aufgenommenem Photo, zu sehen. In der linken Vakuumkammer befindet sich die Ionenfalle, wobei Vakuumfenster aus verschiedenen Raumwinkeln den optischen Zugang zur Falle für die

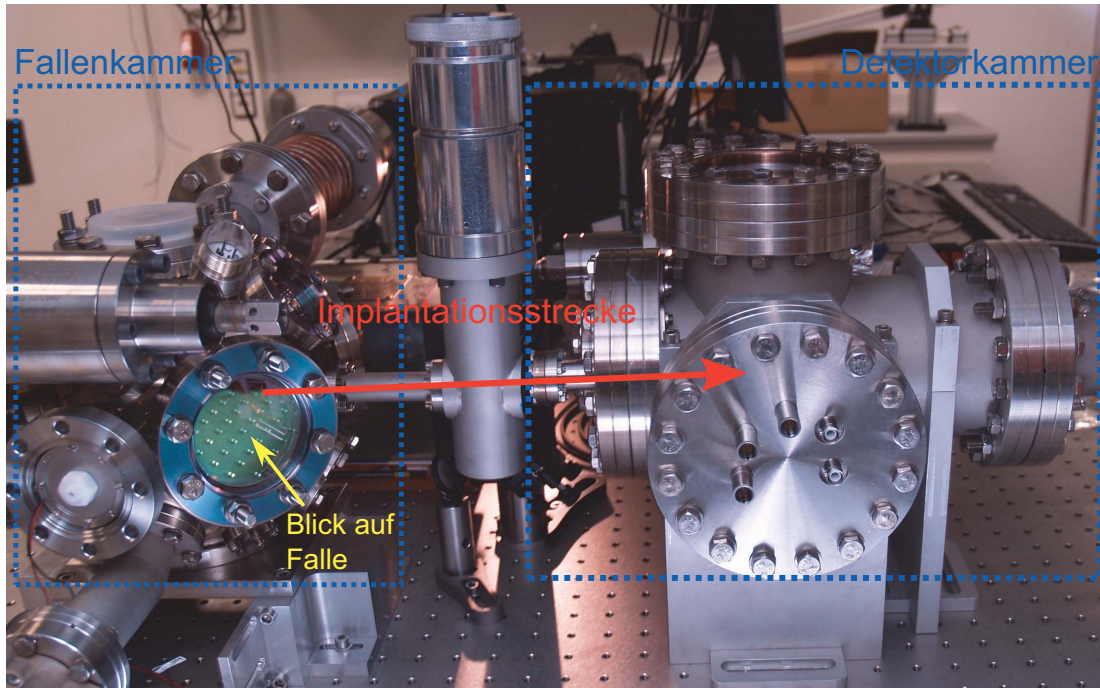


Abbildung 2.7.: Dieses während des Zusammenbaus entstandene Photo zeigt links die Fallenkammer, in welcher sich die zum Fangen, Kühlen und Extrahieren genutzte Ionenfalle befindet. Dort gespeicherte Ionen können entlang einer differentiellen Pumpstrecke (roter Pfeil) in die Detektorkammer geschossen werden, in welcher sich die mit Nanometergenauigkeit positionierbare Probe sowie die zur Fokussierung genutzte Ionenoptik befindet. Die beiden Kammern sind auf diesem Photo noch nicht verbunden. Der gelbe Pfeil markiert die Blickrichtung aus der Abb. 2.8 a) aufgenommen wurde.

verschiedensten, zur Operation notwendigen Laser sowie zur optischen Auslese gefangener Ionen geben. Über eine Verbindung, die als differentielle Pumpstrecke ausgelegt ist, können gespeicherte Ionen in die zweite Kammer, die Detektorkammer, extrahiert werden. Dort sind die zur Fokussierung notwendige Ionenoptik sowie der Probenhalter montiert, welcher seinerseits auf einem dreidimensional verschiebbaren Piezotisch gehalten ist. So lassen sich zur Implantation beliebige Stellen auf der Probe nanometergenau ansteuern. In Kapitel 3 wird die Detektorkammer und ihre Funktionsweise im Detail erläutert. Die Theorie des Fangens und Vermessens sowie des Extrahierens der Ionen sind Gegenstand bereits vorliegender Arbeiten, auf welche ich an dieser Stelle verweisen möchte: Einen vollständigen Überblick über die Grundlagen und die bisher

durchgeführten Messungen an der Ionenfalle gibt Schnitzler (2010). Ulm (2010) führt die Identifikation und Trennung geladener Ionen, Jacob (2010) die zur Fokussierung entwickelte Ionenoptik genauer aus. Ferner wurde eine weiter verbesserte Version der Ionenfalle konstruiert, welche die bisher verwendete Falle ersetzen wird. Sie ist sehr ausführlich in Kehlberger (2011) beschrieben. Die in dieser Arbeit gezeigten Photographien beziehen sich auf diese neue Fallenversion. Die Funktionsweise des Gesamtexperimentes möchte ich im Folgenden zusammenfassen.

2.3. Ionenfalle als Einzelionenquelle

Eine lineare Paulfalle erlaubt es Ionen und deren Isotope eines breiten Massen- und Ladungsbereichs durch zeitabhängige elektrische Potenziale zu speichern. Der hierfür notwendige dreidimensionale Einschluss wird dabei durch Überlagerung elektrischer Wechselfelder mit entlang einer Symmetrieachse, der Fallenachse, verlaufender statischer elektrischer Potentiale erzeugt (Raizen u. a., 1992).

Die im Experiment verwendete, auf die Extraktion geladener Ionen optimierte Falle zeigen Abb. 2.8 a) und b). Die Anordnung der x-förmigen Falle innerhalb der Vakuumkammer ist dabei in Teil a) zu erkennen, wobei der Blickwinkel dieses Photos durch einen gelben Pfeil in Abb. 2.7 gekennzeichnet ist. Im Fangbereich lassen sich Ionen speichern, durch Laserkühlung kühlen und ggf. trennen, bevor sie entlang der Fallenachse in Richtung der Probe extrahiert werden. Erlaubt wird das Trennen dabei durch eine Segmentierung der Elektroden, wodurch die Potenzialverläufe sich verformen lassen. Teil b) der Abb. 2.8 zeigt die elf einzelnen Fallensegmente, realisiert durch Goldleiterbahnen. Die beiden kegelförmigen Endkappen-Elektroden rechts und links der Segmente sind mit Bohrungen - hier nicht zu erkennen - entlang ihrer Längsachse versehen. Eine entsprechende Spannungsbeschaltung erlaubt so einen optimierten Extraktionsprozess, bei welchem die Ionentrajektorien entlang der Bohrungen verlaufen (Kehlberger, 2011).

Die einzelnen zur Implantation notwendigen Schritte, beginnend beim Laden von Ionen über deren Kühlen bis hin zur Implantation, zeigt Abb. 2.9. Die Falle ist hier in zwei Dimensionen gezeichnet und exemplarisch in fünf einzelne Segmente unterteilt. Ladungsvorzeichen auf den Fallensegmenten sollen dabei eine Vorstellung über die benötigten Spannungen zur Erzeugung des jeweils rechts skizzierten, notwendigen axialen

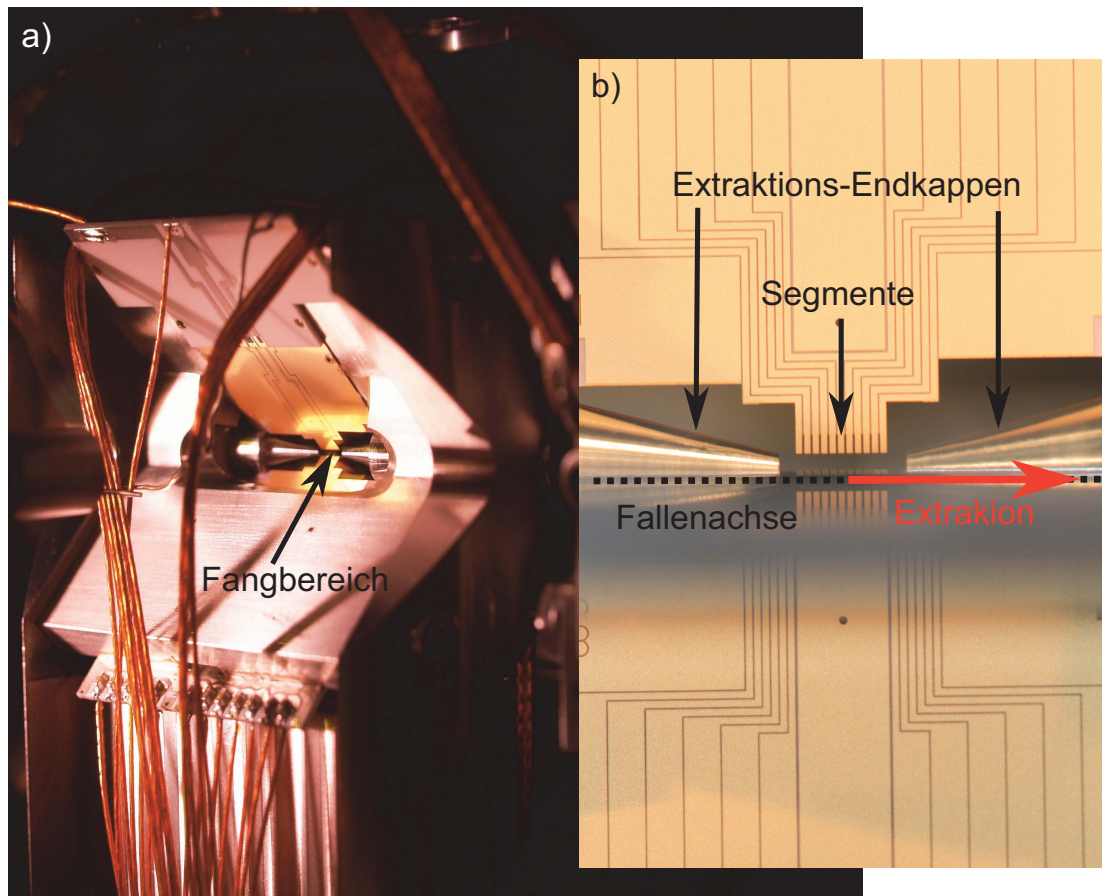


Abbildung 2.8.: a) zeigt eine Photographie der x-förmigen Ionenfalle im Vakuum. Der Blickwinkel des Bildes ist durch einen gelben Pfeil in Abb. 2.7 markiert. Die Fallenflügel sind in (b)) elf Goldelektroden segmentiert, auf deren Basis sich gespeicherte Ionen vermessen und trennen lassen. Die kegelförmigen Endkappen-Elektroden rechts und links des Fangbereichs dienen der Extraktion der Ionen, wobei deren Flugbahnen durch eine entlang der Fallenachse verlaufende Bohrung längs der Endkappen verlaufen.

Potenzials geben.

Zum Laden der Falle stehen zwei verschiedene Mechanismen zur Verfügung. Zum einen werden durch isotopenselektive resonante Laserionisation Atome eines auf die Falle gerichteten Kalzium-Atomstrahls ionisiert und sodann im elektrischen Feld der Falle gespeichert. Andererseits können über nicht-resonante Mehrphotonenprozesse beliebige Ionenspezies durch Einstrahlen eines gepulsten Lasers ausreichender Intensität aus dem

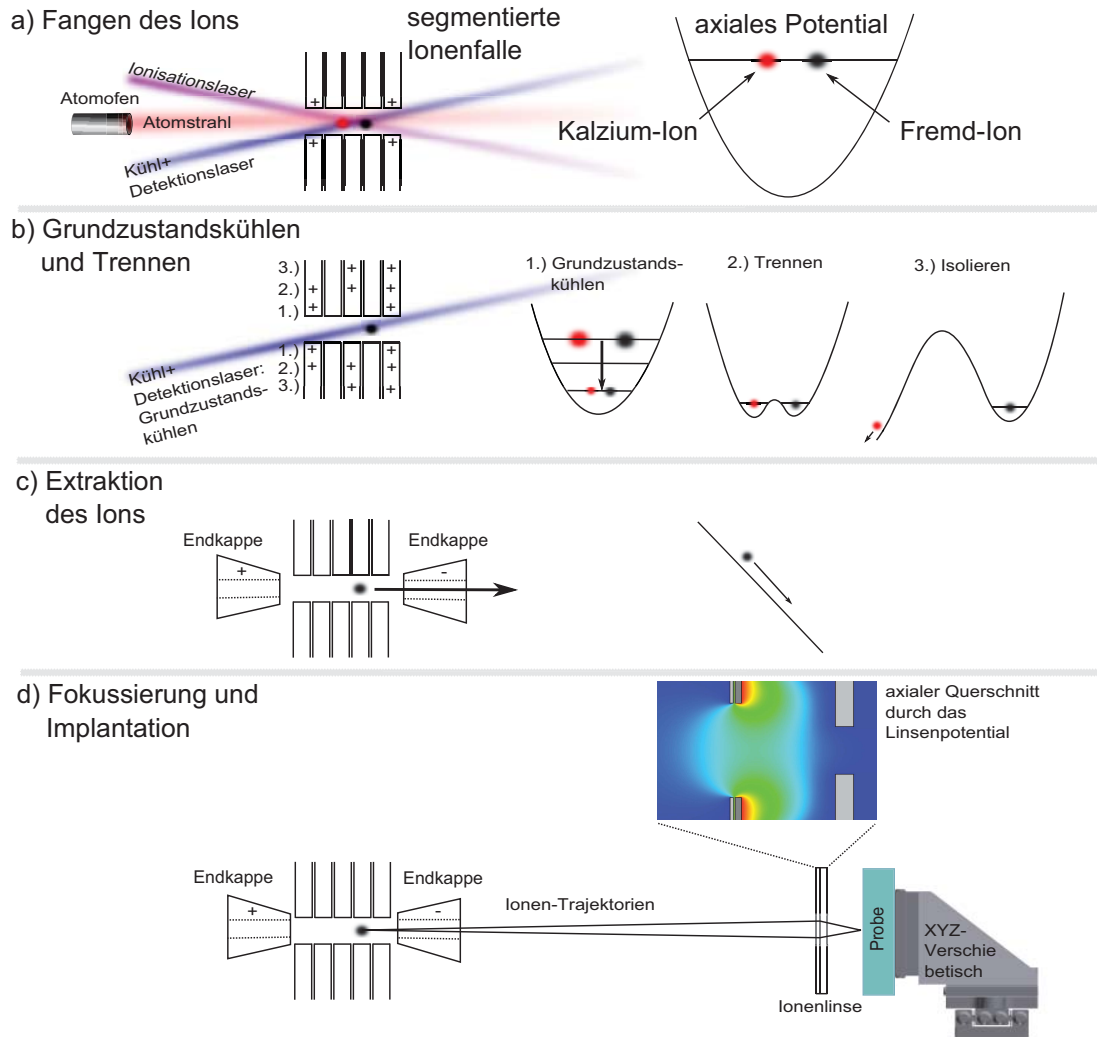


Abbildung 2.9.: a) Kalzium Atome werden ionisiert, lasergekühlt und im elektrischen Potenzial gefangen. Ihre Fluoreszenz wird genutzt, um die Massen beliebiger, aus dem Hintergrundgas speicherbarer weiterer Ionenspezies zu vermessen. b) Durch sympathetisches Kühlen können die Ionen bis in ihre Schwingungsgrundmode gekühlt und durch entsprechendes Formen der axialen Fallenpotentiale getrennt werden. Das Ion wird (c) Richtung Probe beschleunigt und dessen möglichen Trajektorien (d)) mittels einer Ionenlinse auf die Probe fokussiert. Statt des Trennens kann die Ionenoptik selbst als Ionenfilter dienen und nur die gewünschte Spezies auf die Probe fokussieren.

Hintergrundgas ionisiert und so ebenfalls gespeichert werden (s. Teil a) der Abb. 2.9). Das Hintergrundgas selbst kann dabei durch ein Dosierventil an der Vakuumkammer variiert und so ein entsprechender Partialdruck der gewünschten Atom- bzw. Molekülsorte erreicht werden. Zum anschließenden Kühlen (Teil b.1)) wird das Termschema des Kalziumions (Lancaster u. a., 2003) ausgenutzt, auf welches ein zur Verfügung stehendes Laserkühlsystem angepasst ist. Die Betrachtung des Fluoreszenzlichts des Kalzium Ions über eine EMCCD-Kamera erlaubt es zudem dessen Schwingungsmoden im Fallenpotential zu verfolgen. Da diese aufgrund der Coulombwechselwirkung der gespeicherten Ionen untereinander von der Anzahl und Masse aller Teilchen abhängen, lassen sich so Masse und Anzahl der gefangenen Spezies bestimmen. Ferner führt die Wechselwirkung dazu, dass sich die durch die Kühlung entstehende Energieminderung auf alle in der Falle befindlichen Ionen verteilt, wodurch Kühlung des Kalzium Ions allein ausreicht, um beliebige Ionen sympathetisch mit zu kühlen. Das Anwenden weiterer Kühlverfahren erlaubt es auf diese Weise sogar alle in der Falle gespeicherten Teilchen in ihre Bewegungsgrundzustände zu überführen. Sind diese erreicht, so sind Orts- und Impulsschärfe der Ionen minimal, das heißt durch die Heisenbergsche Unschärferelation gegeben. Werden die gespeicherten Teilchen aus diesem Zustand heraus extrahiert, weisen sie demgemäß minimale Emmitanz auf (Hinterberger, 2008). Die Ionenfalle stellt dann eine perfekte Punktquelle am Heisenbergschen Limit dar. Um gezielt eines der gespeicherten Ionen in eine Probe zu implantieren, stehen nun zwei Mechanismen zur Auswahl: Einerseits kann die Form des axialen Potentials derart variiert werden, dass die Ionen noch in der Falle selbst getrennt und isoliert werden (s. Teil b.2) und b.3)). So ist es möglich das gewünschte Ion allein zu extrahieren. Andererseits erlauben die bekannten Trajektorien der Ionen auf ihrer Bahn zur Probe den Einsatz einer Ionenoptik, welche zum einen zur Fokussierung auf die Probe sowie zum anderen als Flugzeit Ionen Filter eingesetzt werden kann. Da neben Zeitpunkt und Ort der Extraktion die Energie- und Geschwindigkeitsfluktuationen bekannt sind, lässt sich durch zeitliches Anpassen der genutzten Fokussierungsfelder ferner eine Aberrationskorrektur der Ionenoptik durchführen (Fickler, 2009). Dies erlaubt die Implantation bei einer lateralen Auflösung im Nanometerbereich. Die bekannte Einschussenergie - von eV bis hin zu mehreren keV - ermöglicht zudem eine kontrollierte Eindringtiefe in das Material, welche in selbiger Größenskala liegt (s. Kapitel 2.1.2). In Kombination mit der nanometergenauen Positionierbarkeit der Probe bietet diese Technik so die Genauigkeit, wie sie zur deterministischen Erzeugung wechselwirkender Qubits, insbesondere zur Erzeugung von NV Zentren, unabdingbar und mit keiner weiteren Technik bisher erreichbar ist.

3

Nachweis einzelner NV Zentren

Gegenstand dieses Kapitels ist die Beschreibung des im Rahmen der Diplomarbeit entworfenen und aufgebauten Messplatzes, in welchen die aus der Paulfalle extrahierten Ionen hinein geschossen werden sollen. Im Vorfeld der Konstruktion wurde eine Reihe verschiedener Zielkriterien an die zu fertigende Apparatur definiert.

Die primäre Aufgabe ist es dabei einen geeigneten Implantationsplatz unter Aufrechterhaltung eines Ultrahochvakuums (UHV) zur Verfügung zu stellen. Dies beinhaltet sowohl die Integration der Ionenoptik zur Fokussierung und Formung der Ionentrajektorien als auch eine Vorrichtung, die sich zur effizienten Vermessung der Strahlqualität eignet. Andererseits muss die Apparatur die Positionierung verschiedener Proben bezüglich des Ionenstrahls ermöglichen, die die Implantation mit einer Präzision im Bereich von Nanometern erlaubt. Hierfür müssen zum einen Ionenoptik und Probe möglichst fix zueinander, zum anderen der gesamte Aufbau entsprechend stabil gegen mechanische Schwingungen sein. Ferner muss der Austausch einer Probe gegen eine neue mit geringst möglichem experimentellen Aufwand, insbesondere aber ohne Einwirkungen auf die Falle selbst machbar sein.

Die zweite Aufgabe der Apparatur ist es als Messplatz erzeugter Farbzentren zu fungieren. Hierfür muss er zukünftig die Möglichkeit bieten implantierte Ionen durch Annealing (geeignetes Aufheizen, s. Kapitel 2.1.2) in Farbzentren zu überführen und diese einzeln nachzuweisen. Um die Auflösung der Implantation überprüfen zu können, sollte es zudem möglich sein die Nachweismethode durch ein entsprechend genaues Verfahren zu erweitern.

Derzeit sind eine Erweiterung des Aufbaus um eine Vorrichtung zum Annealing, sowie um ein zusätzliches STED-Mikroskop in Gange, während die bestehende Apparatur die restlichen Anforderungen bereits erfüllt. Im Folgenden wird deren Realisierung beschrieben, wobei zunächst auf die Detektion der Farbzentren mittels Konfokalmikroskopie, dann näher auf die technische Umsetzung des Aufbaus eingegangen wird.

3.1. Das Konfokalmikroskop

Zum Nachweis implantierter Farbzentren lässt sich deren emittierte Fluoreszenz nach optischem Anregen (vgl. Kapitel 2.1.3) ausnutzen. Um bereits in-situ nachweisen zu können, dass Farbzentren erzeugt wurden, wurde daher ein UHV-Konfokalmikroskop in den experimentellen Aufbau integriert, mit dessen Hilfe das Fluoreszenzlicht detektiert werden kann. Der Vorteil eines solchen Mikroskops gegenüber Weitfeldtechniken ist eine höhere erreichbare Auflösung und ein maßgeblich besserer Kontrast der aufgenommenen Bilder.

Die grundlegenden Ideen, die zum Verständnis dieser Bildgebungstechnik notwendig sind, sollen im folgenden Abschnitt erläutert werden. Im sich anschließenden Abschnitt werden dann die erreichbaren optischen Eigenschaften in den Vergleich zur Weitfeldmikroskopie gestellt, wobei ich mich dabei auf die Resultate selbst beschränken möchte. Im Anhang A.1 wird die Theorie skizziert, auf der diese Resultate basieren. An dieser Stelle möchte ich anmerken, dass zur (Konfokal-)Mikroskopie zahlreiche Literatur (sehr verständlich etwa Webb (1996)) existiert, auf welche ich für alle über diese Punkte hinausgehenden Fragen verweisen möchte. Im letzten Abschnitte wird die experimentelle Umsetzung beschrieben.

3.1.1. Funktionsweise eines Konfokalmikroskops

Die prinzipielle Funktionsweise eines Konfokalmikroskops soll anhand des in Abb. 3.1 skizzierten Strahlengangs erläutert werden.

Ein Anregungslaser wird mittels eines Objektives möglichst hoher numerischer Apertur (NA) auf die Probe gerichtet, wobei dort im beleuchteten Probenvolumen lokal Streu- und Fluoreszenzlicht entsteht. Mit einem zweiten Objektiv kann das von der Probe emittierte Licht aufgesammelt und durch ein Filter vom Anregungslicht getrennt werden. In unserem Aufbau handelt es sich um einen epiaxialen Aufbau: Zur Beleuchtung und zum Sammeln des Lichtes wird dasselbe Objektiv genutzt. Das anschließende Fokussieren auf eine Lochblende erlaubt es lediglich Licht aus der gewünschten Tiefenebene zu erhalten. Die Ausrichtung der optischen Elemente erfolgt dabei derart, dass einerseits das Anregungslicht in dieselbe Ebene fokussiert wird, aus der das emittierte Licht gesammelt wird¹ und andererseits die Lochblende in der Bildebene der resultierenden Abbildung steht. Dieser konfokalen Anordnung optischer Elemente verdankt die Technik

¹Beim epiaxialen Aufbau ist dies definitionsgemäß immer der Fall.

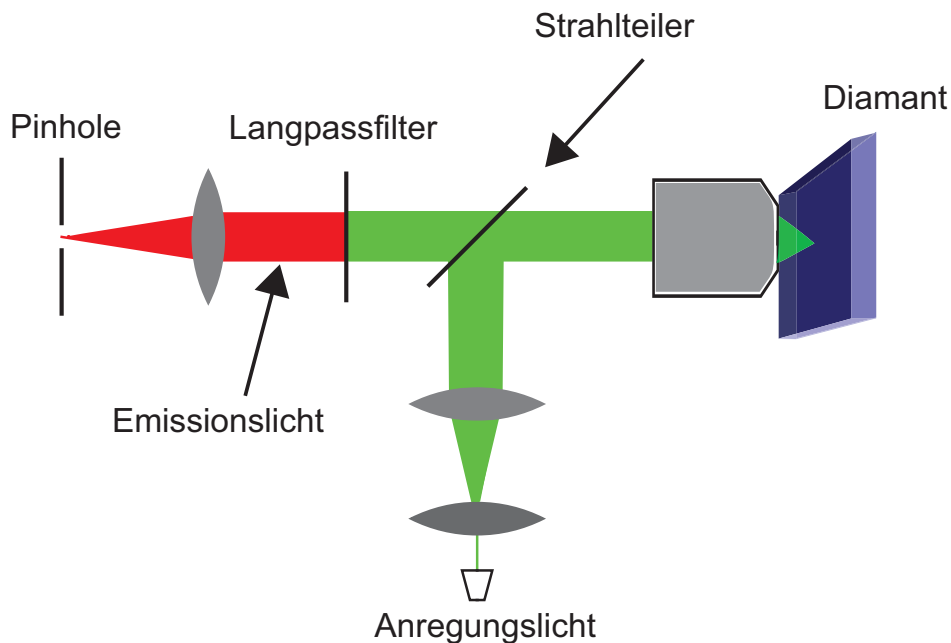


Abbildung 3.1.: Ein Anregungslaser wird auf eine Probe fokussiert, wodurch von dort aus Fluoreszenz- und Streulicht emittiert werden. Im hier vorliegenden epiaxialen Fall wird dasselbe Objektiv zur Fokussierung als auch zum Einsammeln des emittierten Lichts genutzt. Durch chromatisches Filtern lassen sich Anregungs- und Emissionssstrahl voneinander trennen, durch räumliches Filtern mittels einer Lochblende lassen sich gezielt Tiefenebenen in der Probe beobachten.

ihren Namen. Auf diese Weise wird, wie Abb. 3.2 a) skizziert, aus dem interessierenden Probenvolumen stammendes Licht (bei nicht zu kleiner Wahl der Lochblende) praktisch uneingeschränkt abgebildet, während Licht aus umliegenden Ebenen (bei nicht zu großer Wahl der Lochblende) sehr effizient abgeschwächt wird. Es ist dem Ausblenden des unerwünschten Lichtes und des daraus resultierenden höheren Kontrastes zu verdanken, dass sich das Konfokalmikroskop im Vergleich zum Weitfeldmikroskop zur Darstellung einzelner Fluoreszenzpunkte eignet.

3.1.2. Kontrast und Auflösungsvermögen

Unter dem Kontrast eines Bildpunktes kann man sich das Maß vorstellen, mit dem er sich von seinem Untergrund abhebt. Das Auflösungsvermögen beschreibt in einfachster Form, wie nah zwei Punkte aneinander liegen dürfen, um ihre Bilder noch getrennt be-

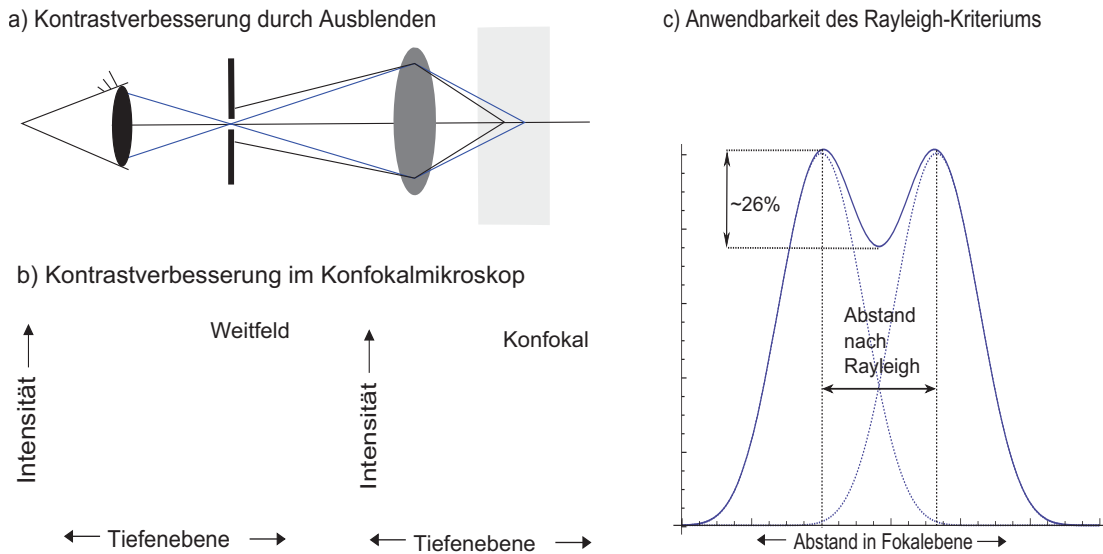


Abbildung 3.2.: a) Der große Vorteil der Konfokalmikroskopie ist das verbesserte Kontrastverhältnis, welches durch das Ausblenden unerwünschter Tiefenebenen erreicht wird. b) Die blaue Kurve zeigt das sich ergebende axiale Intensitätsprofil, was bei Abbildung zweier unterschiedlich heller Punkte (Verhältnis 50:1) entsteht, die in verschiedenen Tiefenebenen liegen. Die rote Kurve zeigt den Verlauf für den schwächeren der beiden Punkte allein. Erst im konfokalen Fall kann man beide Punkte getrennt erkennen. c) Zur Definition des Auflösungsverhältnisses wird in dieser Arbeit das Rayleigh Kriterium auf Intensitätsverläufe angewendet. Der minimale Abstand, bei dem zwei gleich intensive Punkte noch getrennt auflösbar sind ist jener, bei dem die Intensität zwischen beiden Punkten um 26 % der Maximalwerte fällt.

trachten zu können. Beide Größen, Kontrast und Auflösungsvermögen, sind tatsächlich nicht unabhängig voneinander².

Eine mathematische Formulierung beider Größen erlaubt die Punktspreizfunktion (Point-Spread-Function, PSF), welche die Abbildung eines punktförmigen Objektes durch das Objektiv beschreibt. In Anhang A.1 wird näher hierauf eingegangen. Die Verläufe der PSF entlang der optischen Achse für den Fall der Weitfeld- und der Konfokalmikroskopie stellt Abb. 3.2 b) gegenüber, wobei dort zwei unterschiedlich helle Punkte betrachtet werden, die in verschiedenen Tiefenebenen liegen. Man sieht sehr deutlich, dass obgleich das Auflösungsvermögen in beiden Fällen geringer als der Abstand beider Punkte ist, erst durch die Kontrastverbesserung in der konfokalen Bildgebung der weniger intensive Punkt einzeln zu erkennen ist. Im Falle des Weitfeldmikroskops verschwimmt der

²Ihre Abhängigkeit kann durch die Kontrastübertragungsfunktion beschrieben werden.

weniger intensive Punkt im Untergrund des intensiveren, obgleich der Abstand beider Punkte gemäß üblicher Definitionen des Auflösungsvermögens groß genug zur getrennten Darstellung ist. Ein ähnliches Bild ergibt sich für den axialen Fall, wobei dort lediglich der funktionale Verlauf des Intensitätsprofils eine leicht andere Form annimmt.

Im Rahmen dieser Arbeit soll als Definition des Auflösungsvermögens das Rayleigh Kriterium heran gezogen werden. Dieses bezieht sich auf das Intensitätsprofil, welches im Falle der Weitfeldmikroskopie durch die Abbildung zweier Punkte aus der Fokalebene des Objektivs entsteht. Die Abbildung eines Punktes besitzt in diesem Fall die Form von Airy-Ringen (vgl. Anhang A.1). Werden nun zwei benachbarte, gleich intensive Punkte abgebildet, so entstehen entsprechend zwei benachbarte Airy-Ring-Muster. Das Rayleigh-Kriterium ist nun definiert als der Abstand bei welchem das Hauptmaximum des einen entstehenden Ring-Musters im ersten Minimum des zweiten liegt. Zwischen den beiden Maxima nullter Ordnung fällt die Intensität dann um etwa 26 %. Dieser Intensitätsunterschied lässt sich heranziehen, um ein vergleichbares Kriterium für andere Intensitätsverläufe zu erhalten. Diese Definition ist in Abb. 3.2 c) am Beispiel zweier gaußförmiger Profile gezeigt.

Die nach dem Rayleigh Kriterium berechneten Auflösungsvermögen stellt Abb. 3.3 für die Fälle des Weitfeld- und des konfokalen Mikroskops vergleichend dar. Die Anregungswellenlänge entspricht dabei der im Experiment genutzten Wellenlänge, 532 nm. Das emittierte Licht ist in der Rechnung mit 800 nm angesetzt. Als größte Wellenlänge des Emissionsspektrums des NV Zentrums (s. Abb. 2.5) setzt sie die emissionsseitige Limitierung des Auflösungsvermögens. Für den Verlauf der abgebildeten Intensitätsprofile der Weitfeldmikroskopie ist die Anregungswellenlänge nicht von Bedeutung, lediglich die des emittierten Lichts geht analog mit 800 nm in die Berechnung ein. Die NA des Objektivs entspricht in beiden Situationen dem im Experiment genutzten Wert von 0.95.

3.1.3. Das Mikroskop im Experiment

Die experimentelle Realisierung des Mikroskops und dessen Integration in den Gesamtaufbau ist in Abb. 3.4 dargestellt. Während im nächsten Abschnitt auf die Aspekte der Ionenimplantation dieser Darstellung eingegangen wird, möchte ich die Abbildung hier

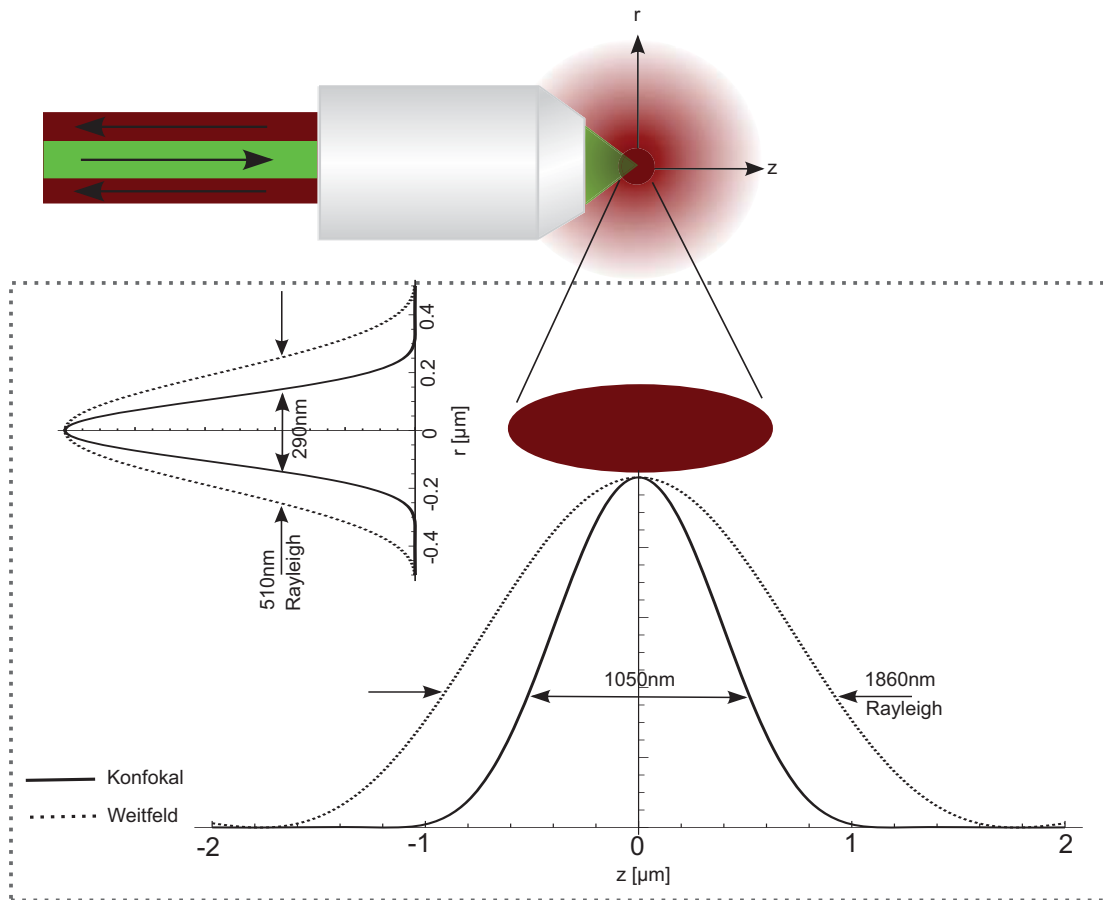


Abbildung 3.3.: Im Falle der Konfokalmikroskopie wird ein Probenvolumen ausgeleuchtet, welches durch die Wellenlänge des Anregungslasers (532 nm) beugungsbegrenzt ist. Das von einem NV Zentrum emittierte Fluoreszenzlicht reicht bis zu einer Wellenlänge von ungefähr 800 nm. Diese begrenzt das Auflösungsvermögen. Die bei Abbildung eines NV Zentrums entstehenden Intensitätsprofile sind durch die gestrichelte Linie für die Weitfeld- bzw. durch die durchgezogene Linie für die Konfokalmikroskopie dargestellt. Die angegebenen Breiten sind gemäß des Rayleigh-Kriteriums berechnet.

nutzen, um Hintergründe zur Optik des Experiments zu erläutern.

Als Anregungsquelle dient ein diodengepumpter Festkörperlaser³, der bei einer Wellenlänge von 532 nm eine Leistung von bis zu 200 mW zur Verfügung stellt. Zur weiteren Verbesserung des Profils wird der Strahl in eine Einzelmodenfaser⁴ eingekoppelt und an-

³Modell: LP532-200, Lumina Visual Productions, Australien

⁴Modell: PMC-460-3.3-NA011-3-APC-150-P, Schäfter Kirchhoff, Deutschland

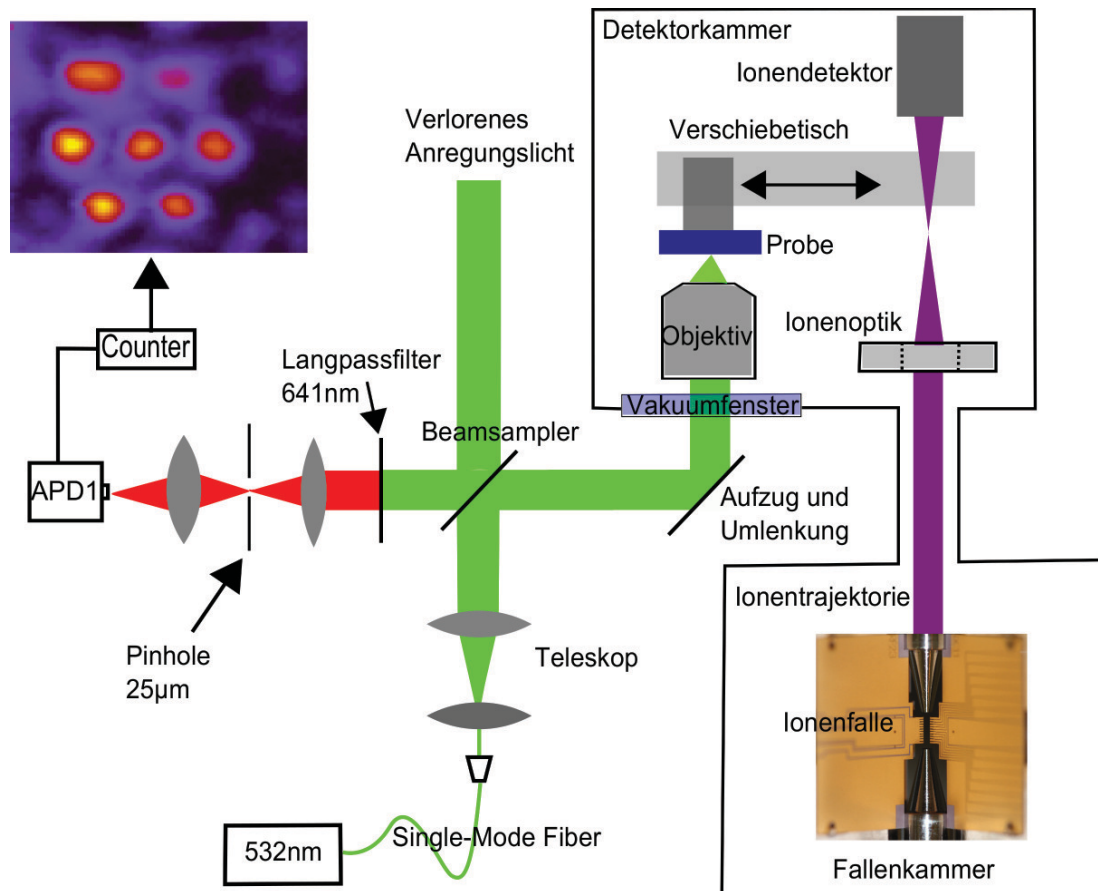


Abbildung 3.4.: Mit Hilfe eines Elektronenvervielfachers können einzelne, aus der Falle in die Detektionskammer extrahierte Ionen nachgewiesen werden. Deren Positionierung erlaubt ein Piezoverschiebetisch, mit dessen Hilfe die Probe mit einer Auflösung eines Nanometers von der Implantationsstelle zum Mikroskop bewegt werden kann. Um koaxial zur optischen Achse des fest in der UHV Kammer montierten Objektives zu verlaufen, wird der Strahlengang durch einen optischen Aufzug in die erforderliche Höhe gebracht. Ein Langpassfilter bei der Wellenlänge 641 nm erlaubt es durch Raman Streuung am Diamantgitter entstehendes Licht sowie den Anregungslaser auf den 10^{-7} -Teil zu unterdrücken.

schließlich aufgeweitet, bevor er auf den Strahlteiler gegeben wird. Als solcher wird ein Beamsampler⁵ genutzt, welcher eine Gesamttransmission von etwa 90 % sowohl für das Anregungs- als auch für das später von der Probe emittierte Licht vorweist. Nur etwa 10 % des Anregungslichtes werden so tatsächlich in Richtung der Probe abgelenkt, wäh-

⁵Modell: BSF20B, Thorlabs, USA

rend der Großteil verloren geht. Da (s. Kapitel 4.2) jedoch nur einige hundert Mikrowatt zur Sättigung der Farbzentren benötigt werden, der Laser jedoch 200 mW Leistung zur Verfügung stellt, schränkt diese der alternativen Nutzung eines dichroitischen Spiegels gegenüber deutlich günstigere Variante die experimentellen Möglichkeiten nicht weiter ein. Der Richtung Probe reflektierte Teil des Laserstrahls wird danach um 90° abgelenkt und über einen aus zwei Spiegeln bestehenden optischen Aufzug auf die erforderliche Höhe gebracht, um koaxial in das fest in der Detektorkammer angebrachte Objektiv (s. Abbn. 3.5 und 3.6) zu treffen. Zwischen Aufzug und dem sich im Vakuum selbst befindlichen apochromatischen Objektiv⁶ passiert das Licht ein antireflexbeschichtetes Vakuumfenster⁷. Das an der Probe entstehende Fluoreszenz- und Streulicht nimmt denselben optischen Weg in entgegengesetzte Richtung, wobei erneut etwa 90% des Lichts am Beamsampler transmittiert wird, in diesem Falle also nur etwa 10 % Verlust vorliegt. Am dahinter angebrachten Filter⁸ wird Licht mit Wellenlänge geringer als 641 nm auf ungefähr seinen 10^{-7} -Teil abgeschwächt, während Licht längerer Wellenlänge zu beinahe 100 % transmittiert wird. Auf diese Weise wird zwar ein Teil des Fluoreszenzspektrums der NV Zentren abgeschnitten (etwa 10 %, vgl. Abb. 2.5), andererseits würde ein Filter bei niedrigerer Wellenlänge es jedoch nicht erlauben, am Diamantgitter auftretendes Raman-Streu-Licht⁹ heraus zu filtern. Die räumliche Filterung geschieht an einer runden Lochblende mit einem Durchmesser von 25 μm . Eine Avalanche Photodiode (APD)¹⁰ erlaubt die Detektion einzelner Photonen mit einer Effizienz die für Wellenlängen des NV Spektrums stets bei über 50 % liegt. Pro registriertem Photon werden so TTL Signale erzeugt, welche über eine Zählkarte¹¹ summiert und mittels eines eigens während dieser Arbeit dafür geschriebenen Kontrollprogramms (s. Anhang A.4) ausgewertet und dargestellt werden. Das zur Erzeugung einer Abbildung notwendige Rastern der Probe wird in diesem Aufbau durch das Verfahren des ebenfalls über jenes Programm gesteuerten Probenhalters bewerkstelligt. Der nächste Abschnitt zeigt, dass eben dieser verschiebbare Probenhalter die abwechselnde Implantation und Untersuchung der Probe erlaubt.

⁶Modell: MPLAPON50x, Olympus, Japan

⁷Dieses ist mit einer Breitbandbeschichtung der Firma Tafelmaier versehen und die Reflexion liegt unterhalb 0.2 % im Bereich von 500 nm bis 800 nm.

⁸Modell: RazorEdge Sperrfilter LP 633 RU, AHF Analysetechnik, Deutschland

⁹Noch bei etwa 620 nm treten Raman-Peaks höherer Ordnung mit Intensitäten größer jener des NV Fluoreszenzlichts auf (Wittmann (2005), Kurtsiefer u. a. (2000)).

¹⁰Modell: COUNT-50C, Laser Components, Deutschland

¹¹Modell: NI PCI 6723, National Instruments, USA

3.2. Die Detektorkammer

Zur Verdeutlichung der Grundgeometrie des Experiments dient noch einmal Abb. 3.4. Rechter Hand sind die beiden Kammern dargestellt, die Fallenkammer, in welcher sich die Paulfalle befindet und die Detektorkammer, in welcher Probe und Ionenoptik installiert sind. Wie in Kapitel 2.2 angerissen, können einzelne Ionen aus der Falle entlang einer differentiellen Pumpstrecke in diese zweite Kammer geschossen werden. Die Ionentrajektorien können dort mit Hilfe einer Ionenoptik fokussiert und auch vermessen werden. Hierzu dient ein Elektronenvervielfacher als Ionendetektor¹² (s. Abb. 3.7), der einzelne positiv geladene Ionen mit einer Effizienz von etwa 80 % nachweisen kann. Zwischen Detektor und Ionenlinse kann sich ein Piezotisch¹³ entlang aller drei Raumachsen mit einer Positionierauflösung von 1 nm bei einer Wiederholbarkeit von 25 nm¹⁴ bewegen. Dieser lässt sich einmal manuell mit einem Controller¹⁵, zum anderen über die Bedienungs Oberfläche der Experimentsteuerung des Mikroskops bedienen. Durch das Anbringen von Aperturen auf dem Verschiebetisch - in der Abbildung nicht eingezeichnet - lässt sich nun die Lage des Fokus der Ionenoptik, sowie dessen Profil bestimmen. Hierzu können Ionen aus der Falle extrahiert und im Detektor registriert werden. Wird die Apertur sodann in die Ionentrajektorie verschoben, lassen sich Ionen nur dann am Detektor nachweisen, wenn ihre Bahnen durch die Apertur verlaufen. Schnitzler u. a. (2009) zeigen Messungen der ersten Fallenversion und Vergleiche mit theoretischen Vorhersagen basierend auf dieser Messmethode. Für diesen Aufbau und den hier gezeigten neuen Typ Falle wurden noch keine solchen Messungen durchgeführt.

Die zweite Aufgabe des Verschiebetisches ist die Halterung und Positionierung der eigentlichen Probe. Diese lässt sich so von ihrer Position zur Implantation hinter der Ionenlinse 49.60 mm entfernt zur Fluoreszenzmikroskopie hinter das ebenfalls in dieser Kammer befindliche Objektiv verfahren. So ist es möglich Ionen zu implantieren und das Resultat im unmittelbaren Anschluss unter dem Mikroskop zu beobachten. Dies erlaubt es noch in-situ Festzustellen, ob die Implantation Erfolg hatte und so ggf. einen weiteren Implantationsanlauf durchzuführen. Anzumerken ist, dass zur Erzeugung von Farbzentren nach der Implantation Annealing durch Heizen der Probe (auf etwa 800°C)

¹²Modell: AF553, ETP electron multipliers, Australien

¹³Bestehend in zwei Achsen aus den Modellen SLC1730-S-UHV und in einer Achse aus dem Modell SLC24120-S-UHV der Firma SmarAct GmbH, Deutschland

¹⁴Dies sind die Herstellerangaben.

¹⁵Modell: MCS-3C-IDH-USB, SmarAct GmbH, Deutschland

durchzuführen ist, wofür der Probenhalter eine entsprechende Fähigkeit zum Aufheizen besitzen muss. Die Vakuumkammer ist so konzipiert, dass diese Erweiterung problemlos möglich ist. Die Messungen dieser Arbeit jedoch wurden mit Hilfe eines nicht ausheizbaren Probenhalters an einer geliehenen Probe (s. Kapitel 4.1) durchgeführt, da die Ionenfalle selbst zum Zeitpunkt der Messungen gegen den neu entworfenen Typ ausgetauscht wurde und Implantationen so nicht möglich waren.

Zwei Photographien des Aufbaus zeigt Abb. 3.5, einmal von der Perspektive der Fallenkammer aus (b)) und einmal aus einer Sicht etwa 135° im Gegenuhrzeigersinn dieser Perspektive gedreht (a)). Zu sehen sind in (7) das hinter dem beschichteten Vakuumfenster montierte Objektiv und, durch einen Blindflansch verschlossen, die Verbindung zur Fallenkammer (8), durch welche die Ionen implantiert werden. Dieses Photo ist während des Zusammenbaus entstanden. Tatsächlich liegen die optische Achse des Objektives sowie die Ionenbahn (bzw. das Objektiv und die Verbindung zur Fallenkammer) auf gleicher Höhe. Über das Ventil (4) in a) lässt sich die Kammer durch Anschließen eines Pumpstandes unter Vakuum bringen. Durch eine Messsonde¹⁶ (5) kann der Druck kontrolliert werden und mit Hilfe einer Ion-Getter Pumpe¹⁷ (angeflanscht bei 6) ein Druck im Bereich 10^{-8} mbar erreicht werden.

An der Rückseite der Kammer (3) befindet sich über zwei Gewindestifte befestigt der Ionendetektor (s. Abb. 3.7) sowie elektrische Durchführungen zu dessen Spannungsversorgung. Die Durchführungen zur Versorgung des Piezotisches sowie der Ionenoptik hingegen befinden sich an einem seitlichen Flansch (2). An diesen ist eine Bodenplatte angeschweißt, die beides, Ionenoptik und Piezotisch, trägt. Möchte man eine Probe austauschen, kann man so den gesamten Flansch heraus nehmen. Dies erlaubt es die Proben zu wechseln ohne Verkabelungen neu zu verlegen, ohne Rejustage des Mikroskops (das Objektiv ist an der eigentlichen Kammer befestigt) und insbesondere ohne Beeinträchtigung der Fallenkammer. Einen Blick durch das Vakuumfenster auf der Oberseite der Kammer (1) zeigt Abb. 3.6 a). Auf Teil b) ist der ausgebaute seitliche Flansch mit Bodenplatte zu sehen.

¹⁶Modell: UHV-24p Nude Bayard-Alpert Meßröhre, Agilent Technologies, Italien

¹⁷Modell: VacIon Plus 55 StarCell, Agilent Technologies, Italien

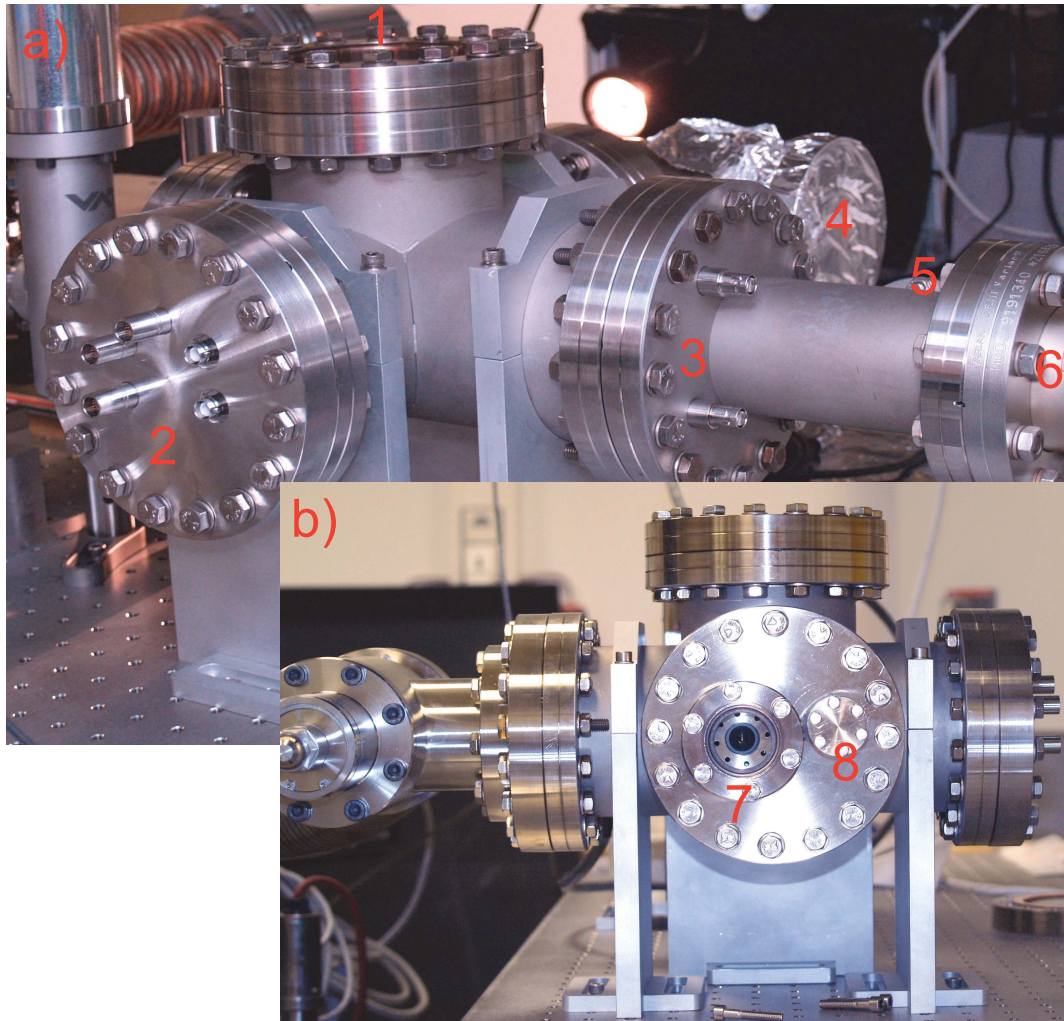


Abbildung 3.5.: a) Durch ein Vakuumfenster (1) lässt sich in die Kammer blicken. Zum Austausch der Probe wird die am Flansch (2) verschweißte Bodenplatte auf der sich Ionenoptik, Verschiebetisch und Probe befinden samt elektrischer Durchführungen heraus genommen. Der Ionendetektor hingegen ist geschützt an der Hinterwand (3) der Kammer befestigt, welche über (4) ein Ventil extern auf Vakuumbedingungen gepumpt werden kann. Der Druck lässt sich über einen Druckmesser (5) bestimmen, bevor eine Ion-Getter Pumpe (6) in den UHV Bereich abpumpt.

b) Die Sicht auf die Kammer - hier während des Zusammenbaus - aus Perspektive der Fallenkammer zeigt das Objektiv (7), welches vakuumseitig hinter einem Vakuumfenster befestigt ist und die - hier mit einem Blindflansch verschlossene - Verbindung zur Fallenkammer.

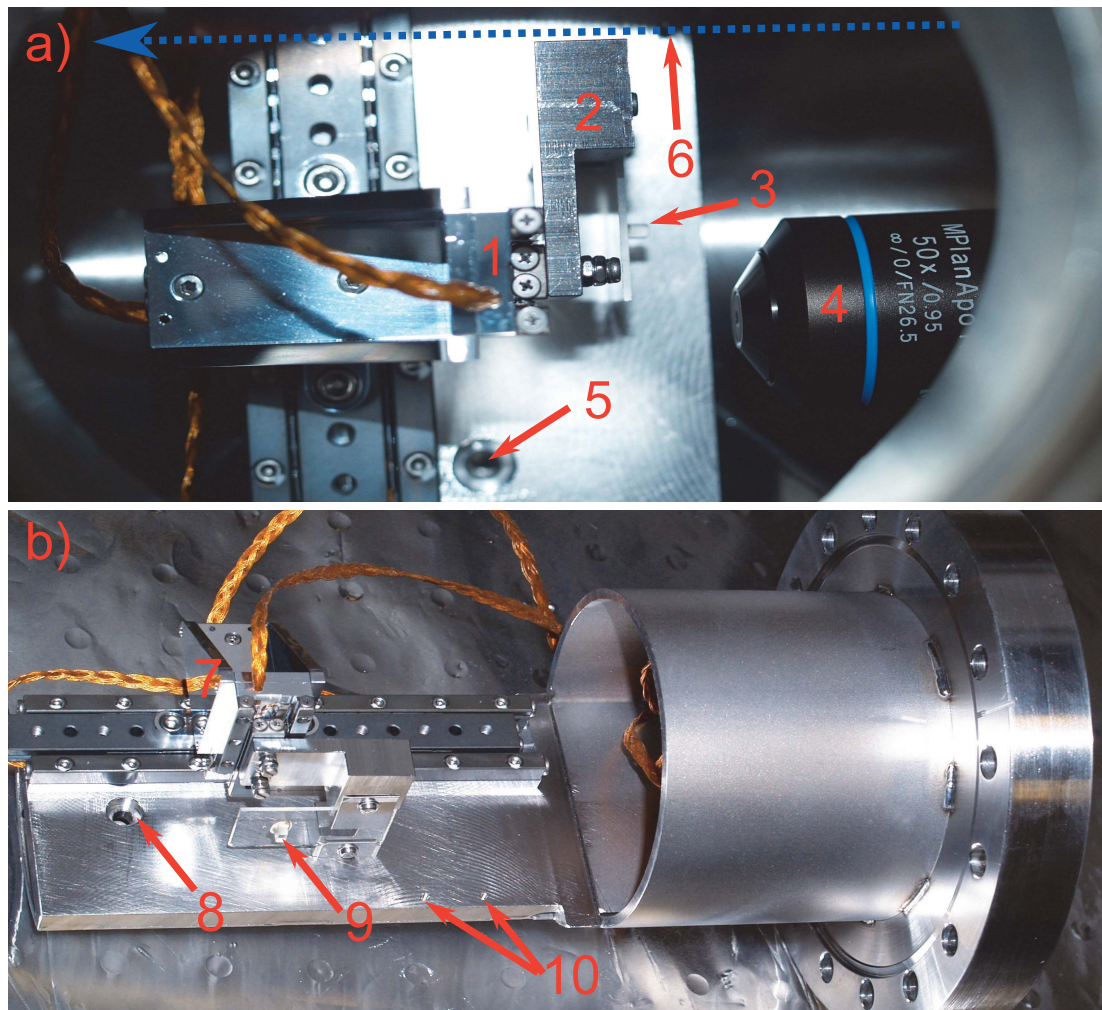


Abbildung 3.6.: a) Am Piezoverschiebetisch (1) ist der Probenhalter (2) befestigt, welcher hier eine auf einer Glasplatte befestigte CaF_2 Probe (3) trägt. Verschieben des Tisches in Richtung des Objektives (4) erlaubt Mikroskopieren der Probe. Eine Verschiebung in entgegengesetzte Richtung hingegen ermöglicht die Implantation von Ionen - deren Bahn ist durch einen blauen Pfeil angedeutet. Hier nicht installiert ist die Ionenoptik, welche über Gewinde (6) in der Bodenplatte befestigt werden kann. b) Die gesamte Bodenplatte, samt Verschiebetisch (7) mit Probenhalter und Probe (9) sowie - in den Gewinden (10) installierbarer - Ionenoptik, kann zum Austausch der Probe heraus genommen werden. Mittels eines Gewindes in der Kammergrundplatte kann sie nach Einbau abermals fixiert werden (8) um mechanisches Schwingen zu vermeiden.

Wird der Verschiebetisch (1) in Teil a) der Abbildung weiter nach unten bewegt, so lässt sich die Probe (3) mikroskopieren. Auf diesem Bild handelt es sich dabei um einen CaF_2 Kristall, welcher auf einer Glasplatte im Probenhalter (2) sitzt. Wird der Verschiebetisch hingegen nach oben verschoben, so kann implantiert werden. Die Bahn von der Falle extrahierter Ionen ist hier durch einen blauen Pfeil angedeutet und zeigt in Richtung des Ionendetektors (Abb. 3.7). Bei Aufnahme dieser Photographie war die Ionenoptik nicht eingebaut. Über Gewinde in der Bodenplatte (6 bzw. 10) können hier verschiedene Optiken installiert werden. Die Bodenplatte selbst lässt sich zur mechanischen Stabilisierung durch ein Gewinde in der Kammer zusätzlich fixieren (5 bzw. 8).

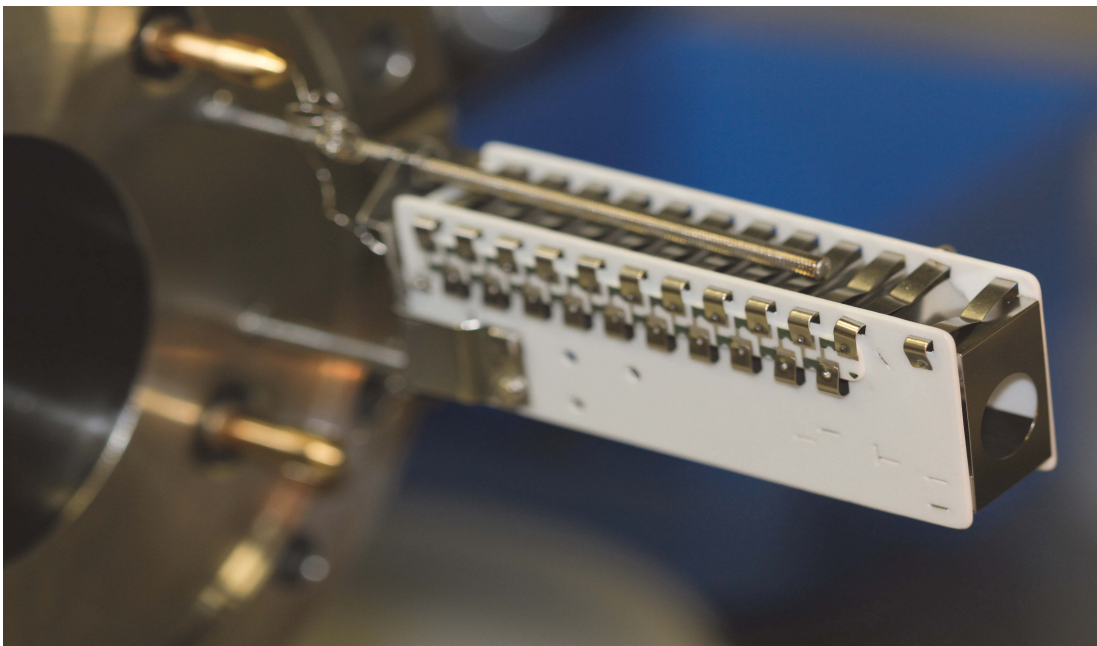


Abbildung 3.7.: Mit Hilfe des Elektronenvervielfachers können positiv geladene Ionen mit einer Effizienz von etwa 80 % nachgewiesen werden. Über zwei Gewindestangen fest in der Kammer installiert kann er so genutzt werden, um einzelne extrahierte Ionen nachzuweisen und über geeignete Techniken (s. Text) die Ionenfokussierung zu vermessen.

Die so konstruierte und aufgebaute Kammer stellt nun alle Möglichkeiten zur Verfügung, um aus der Falle extrahierte Ionen einerseits nanometergenau in eine Probe zu schießen, andererseits erzeugte Farbzentren nachzuweisen. Für die Zukunft lässt sie sich problemlos durch einen aufheizbaren Probenhalter zum Annealing sowie durch STED Mikroskopie erweitern. Für letztere muss in der Tat lediglich der optische Aufbau leicht

angepasst werden, während die Kammer inklusive Objektiv selbst von dieser Erweiterung unberührt bleiben werden. Der Austausch der Proben ist ohne notwendige Neujustage der Optik und mit minimalem experimentellen Aufwand möglich. Für die Zukunft erlaubt das Design der Kammer gar, sollte man dies wünschen, die Erweiterung um eine Vakuumschleuse, mit der Proben ausgetauscht werden könnten ohne das Vakuum in der Detektorkammer selbst brechen zu müssen. Die Fallenkammer bleibt dabei schon jetzt unbeeinträchtigt, als sich beide Kammern durch ein Ventil voneinander separieren lassen. Im folgenden sollen nun Messungen vorgestellt werden, die mit Hilfe dieses Aufbaus an NV Zentren durchgeführt wurden.

4

Messungen mit NV Zentren

In diesem Kapitel werden die durchgeführten Messungen an dem zuvor beschriebenen Versuchsaufbau vorgestellt. Hierzu wird zunächst die mit Hilfe eines Ionen Implantierers in Bochum¹ hergestellte Probe beschrieben, an welcher alle Messungen dieses Kapitels vorgenommen werden konnten. Im Folgenden wird das grundlegende Messprinzip demonstriert, bevor sich in den anschließenden Abschnitten das Finden von Farbzentren, das Bestimmen deren Anzahl anhand von $g^{(2)}(\tau)$ -Korrelations-Messungen und das Vermessen deren Sättigungsverhalten anreihen wird. Darauf folgt ein Abschnitt, in welchem die erreichbaren Auflösungen bestimmt und mit den theoretischen Vorhersagen aus Abschnitt 3.1.2 verglichen werden. Dort werden ferner die Wiederholbarkeit und Effizienz des Aufbaus aufgezeigt, bevor im letzten Teil dieses Kapitels Messungen zur UHV-Tauglichkeit des Systems vorgestellt werden. Außerdem wird dort gezeigt, dass ohne Einschränkungen der Messgenauigkeit Drücke im Bereich von 10^{-7} mbar erreicht werden können.

4.1. Vorstellung der Probe und erster Messungen

Die Messungen wurden allesamt an einem hochreinen CVD² Diamanten³ durchgeführt, in den zuvor mit Hilfe eines Ionen Implantierers Farbzentren sowohl großflächig als auch in kleineren Mustern implantiert wurden. Abb. 4.1 zeigt eine Skizze des hierfür genutzten Implantationsaufbaus, sowie SEM-Aufnahmen⁴ einer dort als Apertur und Positionierwerkzeug genutzten AFM-Spitze⁵. Das Grundprinzip der Implantation entspricht dabei dem in Kapitel 2.1.2 vorgestellten Verfahren, bei dem ein Ionenstrahl auf

¹Implantation durch Jan Meijer und Sébastien Pezzagna, RUBION, Ruhr-Universität Bochum

²Chemical Vapor Deposition

³Hergestellt durch Element Six (E6).

⁴Scanning Electron Microscopy

⁵Atomic Force Microscopy

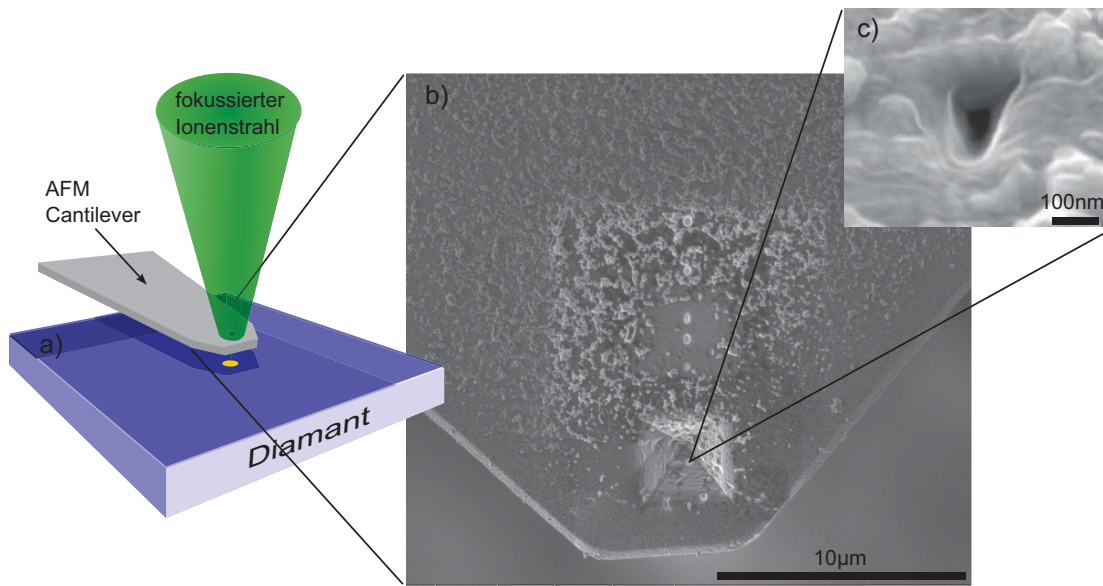


Abbildung 4.1.: Das zur Herstellung der Probe genutzte Verfahren basiert auf dem Einbringen einer AFM Spitze in den Ionenstrahl (a)), in welche Löcher gebohrt sind. Die Spitze kann so zur Positionierung und als Apertur genutzt werden, wobei nur Ionen, die durch die wenigen zehn bis hundert Nanometer großen Löcher kommen die Probe erreichen. b) zeigt eine SEM Aufnahme der Spitze, c) eine weitere Vergrößerung eines der Löcher (SEM Aufnahmen: RUBION, Ruhr-Universität Bochum).

den Diamanten fokussiert wird. In diesem Falle wurde mit $^{14}\text{N}^{+}$ -, $^{15}\text{N}^{+}$ - und $^{15}\text{N}_2^{+}$ -Ionenstrahlen implantiert. Zur Steigerung der Implantationsgenauigkeit wurde in Bochum ein Aufbau entwickelt, bei dem ein AFM-Cantilever⁶ in den Strahlengang eingebracht werden kann (Abb. 4.1 Teil a)). Dieser erlaubt zum einen eine deutlich einfachere Positionierung der gewünschten Stellen auf der Probe, zum anderen steigert er die erreichbare Auflösung der Implantation. Abhängig vom jeweils genutzten AFM-Cantilever lassen sich so Auflösungen im Bereich einiger zehn Nanometer erreichen (Meijer u. a., 2008a). Die Natur der Implantation bleibt dabei aber statistisch und die Anzahl der Ionen nicht vorhersagbar. In den Cantilever selbst wurden vorher kleine Löcher, typischerweise in der Größenordnung einiger hundert Nanometer, mittels FIB⁷ gebohrt. Weitere Techniken lassen sich Ausnutzen, um die Löcher abermals zu verkleinern, wobei einige zehn Nanometer erreichbar sind. Eine SEM Aufnahme der dem Diamanten

⁶Cantilever wird die Messsonde eines AFMs genannt (s. hierzu auch Kapitel 5.1).

⁷Focussed Ion Beam

zugewandten Seite des Cantilevers zeigt Teil b) der Abb. 4.1. Bei dieser Spitze lassen sich mehrere Löcher entlang einer vertikal verlaufenden Reihe erkennen. Eines ist in Teil c) weiter vergrößert dargestellt. Der entscheidende Punkt der hier angewandten Technik ist nun, dass sich der Cantilever als Apertur ausnutzen lässt. Nur Ionen, deren Bahnen durch die gebohrten Löcher verlaufen, erreichen den Diamanten. So können Ionen mit einer Genauigkeit, die ungefähr der des Durchmessers der Löcher entspricht, in den Diamanten implantiert werden. Die Technik und ihre Anwendungsmöglichkeiten werden etwa in Pezzagna u. a. (2010b) oder Meijer u. a. (2008b) weiter ausgeführt. Dort sind Details zum Aufbau sowie weitere Messungen aufgeführt.

Der Diamant selbst ist ein 500 μm -tiefer Quader mit Grundflächenabmaßen von $3 \times 3 \text{ mm}$. Wie in Kapitel 2.1.2 beschreiben, können sich durch Annealing (hier zwei Stunden bei 800°C) am Orte der Implantationen Farbzentren bilden. Die Beschleunigungsspannung der Implantation lag bei 5 kV, weshalb dabei von einer Konversionsrate unter einem Prozent ausgegangen werden muss (s. hierzu Kapitel 2.1.2, insbesondere Abb. 2.3). Die Eindringtiefe liegt für diese Energie ferner bei unter zehn Nanometern (s. ebenfalls Kapitel 2.1.2), weshalb sich die Farbzentren demgemäß in diesem Abstand unterhalb der Diamantoberfläche befinden. Es reicht daher aus, den Anregungslaser auf die Oberfläche zu fokussieren und dort nach Fluoreszenz zu suchen. Praktisch geschieht dies, indem man den Reflex des Anregungslichtes von der Oberfläche beobachtet. Anhand der Form des Beugungsmusters (Airy-Ringe) lässt sich mit einer Genauigkeit einiger hundert Nanometer die Oberflächenposition rasch bestimmen. Ist man nun in der richtigen Tiefenebene, so bieten Aufnahmen mit einer Schrittweite einiger Mikrometer pro Pixel die Möglichkeit einen Überblick über die Probe zu erlangen. Eine solche Aufnahme zeigt Abb. 4.2 b). Bei dem Bild ist die Zählrate in Einheiten Zählereignisse pro Sekunde für die jeweiligen lateralen Positionen - d.h. in der Ebene senkrecht zur optischen Achse - farblich aufgetragen. Um den weiten Bereich verschiedener Zählraten abzudecken ist die Farbskalierung dabei logarithmisch gewählt. Man sieht 20 etwa kreisförmige Punkte mit einem Durchmesser von ungefähr 50 μm . Ursache hierfür ist, dass der Ionenstrahl deutlich breiter ist als der AFM Cantilever selbst. Ein Großteil der Ionen wird demnach nicht vom Cantilever geblockt, sondern erreicht um ihn herum die Probe. Inmitten der Punkte befindet sich ein dreieckförmiger dunklerer Bereich. Hierbei handelt es sich, wie Teil a) der Abb. 4.2 verdeutlicht, um den geblockten Teil des Ionenstrahls. Die eigentlichen Punkte hoher Auflösung, die durch die oben beschriebenen Löcher in der Spitze erzeugt werden können, befinden sich innerhalb dieses Schattens. Auf diesem Bild sind

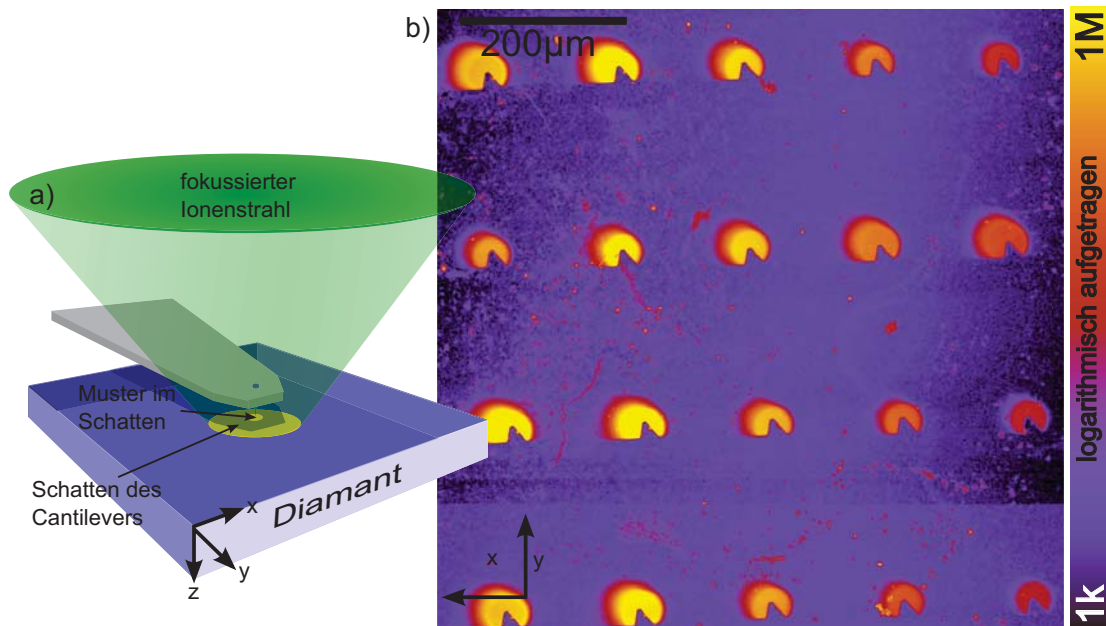


Abbildung 4.2.: Die Spitze ist tatsächlich deutlich kleiner als der Ionenstrahl, sodass ein Großteil der Ionen um die Spitze herum die Probe erreicht (a)). Für jede Implantation entsteht so ein Bereich mit vielen Farbzentren, in dessen Mitte der Schatten der Spitze zu sehen ist (b)) Die eigentlich interessanten Punkte befinden sich inmitten des Schattens. Hier wurden insgesamt 20 solcher Implantierungen durchgeführt. Die Farbkodierung der Aufnahme ist logarithmisch und in Einheiten Zählrate pro Sekunde.

sie schwer zu erkennen. In späterer Aufnahme (Abb. 4.4) wird man sie deutlich sehen. Es zeigt sich in Teil b) der Abb. 4.2, dass nicht alle Implantationsstellen gleich intensiv gemessen werden. Der Grund dafür ist jedoch leicht ersichtlich, wenn man einen Blick auf die Abmaße des Bildes wirft. Die Bildbreite beträgt über 700 µm. Sind Probe und Objektiv dabei leicht gegeneinander geneigt, so verschiebt sich die Tiefenebene abhängig vom Punkt der Messungen und die Intensität verändert sich. Um die Tiefe maximalen Signals zu finden, lässt sich eine Aufnahme innerhalb eines implantierten Bereiches über verschiedene Ebenen aufnehmen. Eine so aufgenommene Verteilung zeigt Abb. 4.3, wobei die mittlere Zählrate pro Pixel gegen die zugehörige Tiefenebene des Bildes aufgetragen ist. Die dort eingezeichneten Bilder a) bis c) zeigen Aufnahmen an drei Implantationsstellen, bei denen die Zählraten pro Pixel innerhalb der implantierten

⁸Der Verlauf der Messwerte erscheint hier deutlich breiter, als die Streuung der Farbzentren entlang der Tiefenachse tatsächlich ist. Ursache ist, dass das Sättigungsverhalten der APD hohe Zählraten

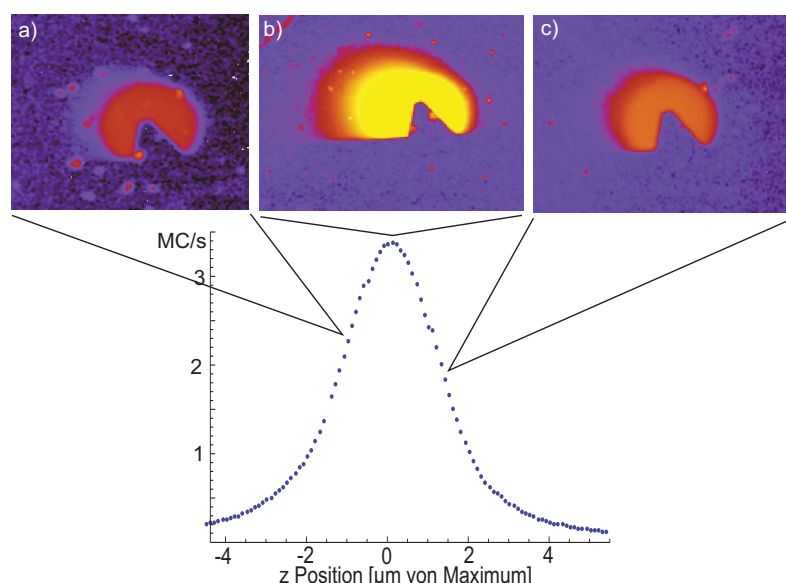


Abbildung 4.3.: Trägt man die Zählrate pro Pixel für Aufnahmen verschiedener Tiefenebenen als Funktion des Abstands zur Fokalebene des Objektives z auf, lässt sich anhand der Höhe des Signals die Fokusebene gezielt ermitteln⁸. Die Bilder a) bis c) zeigen Aufnahmen aus den entsprechenden Abständen.

Bereiche denen der jeweiligen Tiefenebene entsprechen. Sehr deutlich erkennbar ist eine Veränderung der Signalthöhe abhängig von der Tiefe der Aufnahme. Durch Positionieren der Probe in der Ebene höchsten Signals lässt sich so die optimale Messposition einstellen. Die Farbzentren befinden sich dann in der Fokalebene des Objektives.

Eine vergrößerte Aufnahme des Bereiches innerhalb des Schattens einer Spitze zeigt Abb. 4.4. In der ebenfalls logarithmischen Auftragung des Teils b) erkennt man deutlich drei Bereiche, in denen jeweils Muster sichtbar sind. Ursache hierfür ist, dass die für die Herstellung dieser Muster genutzte AFM Spitze tatsächlich drei Löcher unterschiedlicher Durchmesser an den entsprechenden Stellen hatte. Bei einem einzelnen Implantationsvorgang entstehen so drei Punkte mit unterschiedlich großer Anzahl implantierter Ionen und damit unterschiedlicher Anzahl entstandener Farbzentren und Fluoreszenzintensitäten. Zur Erzeugung des Musters wurde mehrmals implantiert, wobei

abdämpft und den diffraktionsbegrenzten Verlauf so staucht. Die Breite erscheint so zu groß. In Abschnitt 4.5 wird das tatsächliche axiale Auflösungsvermögen bestimmt.

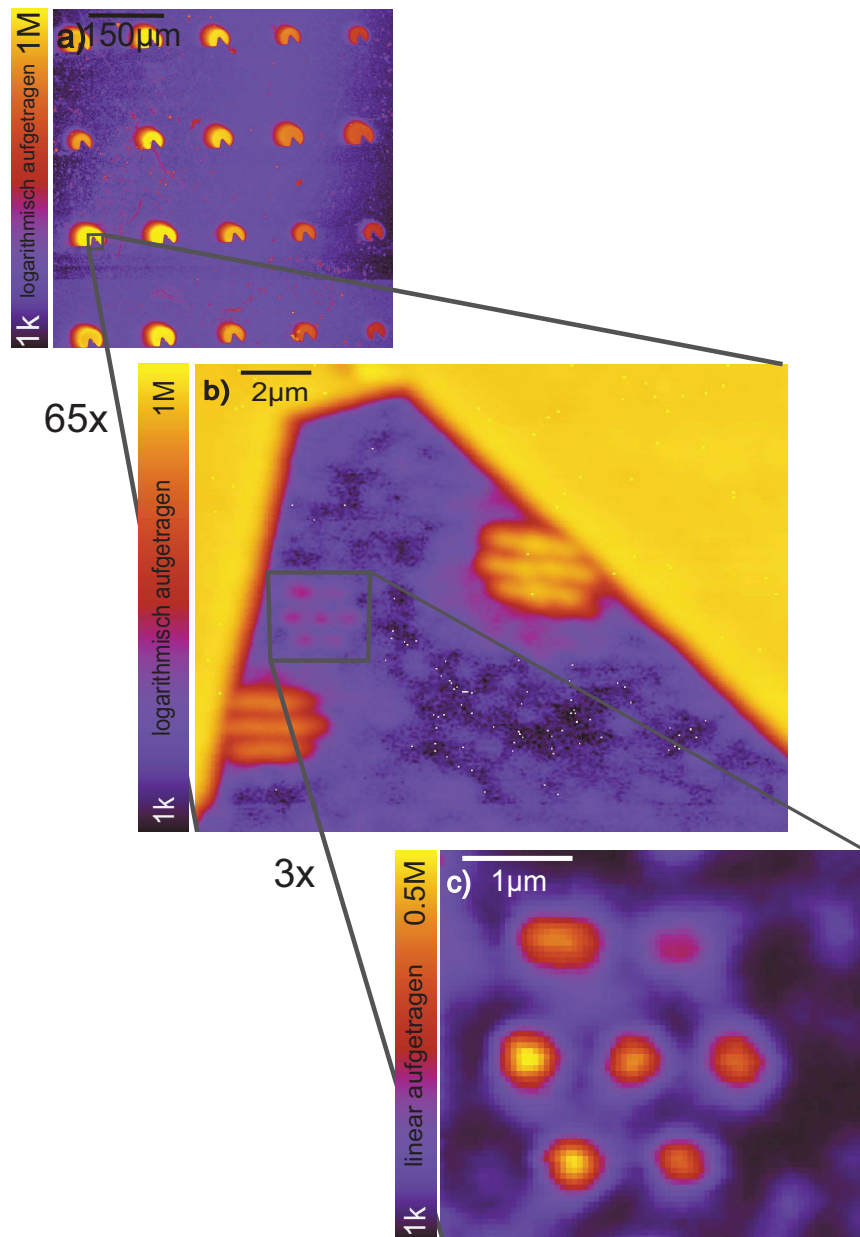


Abbildung 4.4.: Die zur Implantation genutzte AFM Spitze hatte drei Löcher verschiedener Durchmesser. So konnten drei Bereiche unterschiedlich hoher Farbzentrenzahl (b)) innerhalb der Schattenbereiche (a)) erzeugt werden. c) zeigt, dass es sich bei diesen Bereichen um Muster handelt. Sie wurden durch mehrfaches Implantieren und anschließendes Verfahren der Probe um einige hundert Nanometer erzeugt.

die Spitze jeweils um einige hundert Nanometer verschoben wurde um so ein Muster in den Schatten der Spitze zu implantieren. Eine weitere Vergrößerung (50 nm Schrittweite pro Pixel) des so entstandenen Musters geringster Intensität (geringsten Lochdurchmessers) zeigt Teil c) der Abb. 4.4 in nun linearer Farbskalierung. Man erkennt, dass die Punkte nicht alle gleich hell und teilweise nicht radialsymmetrisch verteilt sind. Beide Beobachtungen sprechen dafür, dass jeweils mehrere Farbzentren zum Bild der Punkte beitragen, jedoch nicht einzeln aufgelöst werden können. Im Folgenden soll daher den Fragen nachgegangen werden, welchen Wert das Auflösungsvermögen des Aufbaus annimmt und wie das Bild eines einzigen Farbzentrums aussieht.

Die Probe wurde dazu nach weiteren Punkten abgesucht. Diese sollten sich zwar vom Untergrund abheben, aber dennoch bei gegebener Leistung möglichst geringe Zählraten liefern. Um aussagekräftige Messungen durchführen zu können, sollten diese Punkte ferner möglichst isoliert liegen.

4.2. Sättigungsmessung

Man sieht in Abb. 4.5 einen Punkt innerhalb eines Schattens, der isoliert von weiteren Stellen vergleichbar hoher Zählraten liegt. Durch einen gepunkteten Kasten in Teil c) des Bildes ist er markiert. Umliegende fluoreszierende Stellen, die auf diesem Bild niedrigere Zählraten besitzen, zeigen auf weiteren Aufnahmen höhere. Es konnte keine Stelle beobachtet werden, die dauerhaft niedrigere Lichtemission zeigte als der hier markierte Punkt. Dies ist eine Voraussetzung dafür, dass es sich hier um ein einzelnes Farbzentrum handeln könnte. Ursachen dafür, dass umliegende Punkte in diesem Bild niedrigere, in anderen jedoch höhere Zählraten zeigen, sind Schwanken der Laserleistung sowie der Streurate der Zentren (s. etwa Kapitel 2.1.3 zu Unterschieden in der Streurate abhängig vom momentanen Ladungszustand des Zentrums). Eine zweite Begründung sind Unterschiede in den Implantationstiefen der einzelnen Zentren. Abhängig von der Ebene der Aufnahme hängt so auch die gemessene Intensität eines Punktes von der Tiefenebene ab, weshalb tatsächlich stärker streuende Stellen anderer Ebenen in dieser Aufnahme dunkler erscheinen.

Um Festzustellen, ob es sich bei dem so gefundenen Punkt lediglich um das Streulicht von Dreck, Kratzern, Unebenheiten oder tatsächlich um Fluoreszenzlicht handelt, wurde eine Sättigungskurve aufgenommen. Das Ergebnis dieser Messung zeigt Abb. 4.6.

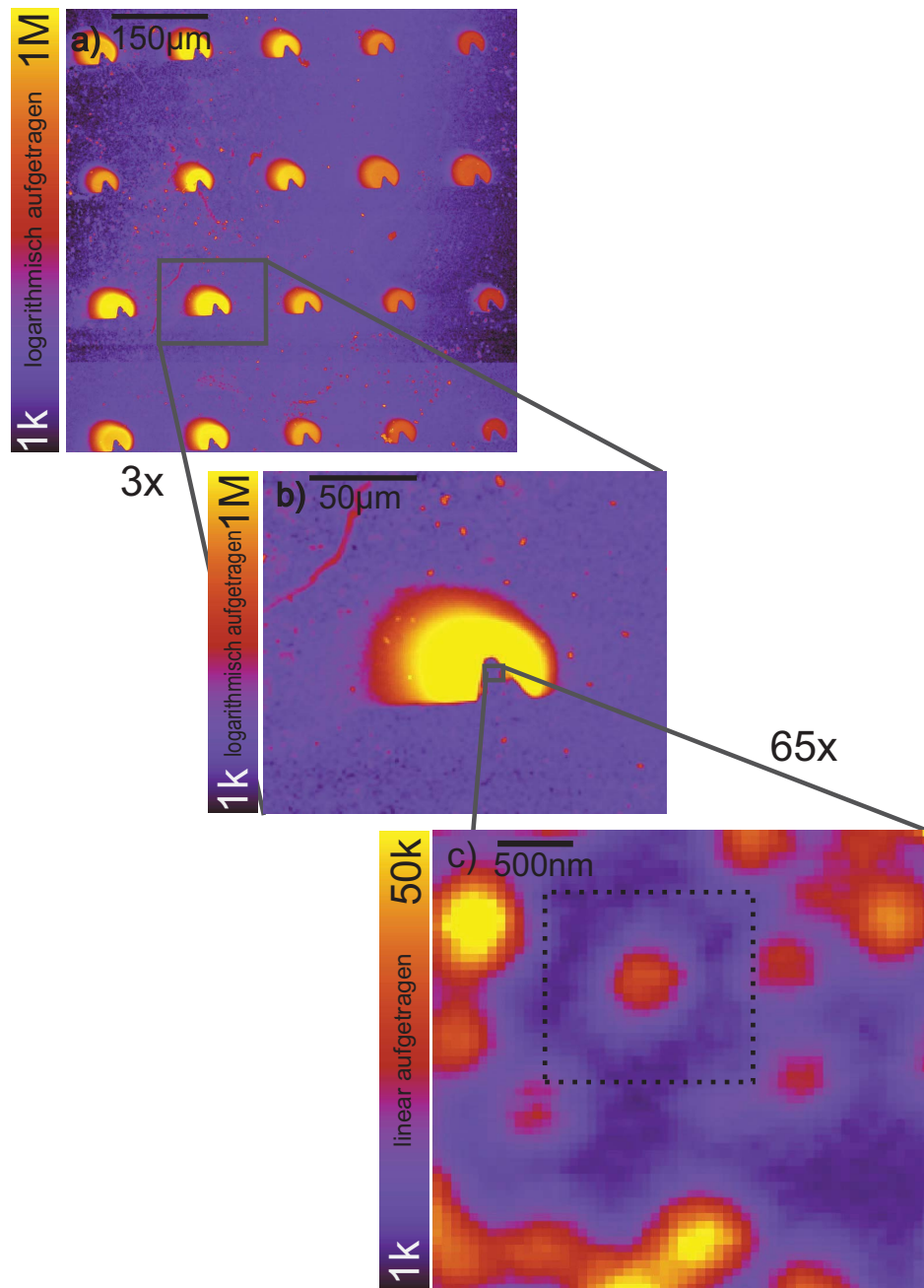


Abbildung 4.5.: Zu sehen ist ein isoliert liegender, Licht-emittierender Punkt. Sättigungsaufnahmen bestätigen, dass es sich hierbei um ein Farbzentrum, nicht um Dreck, Kratzer oder ähnliches handelt.

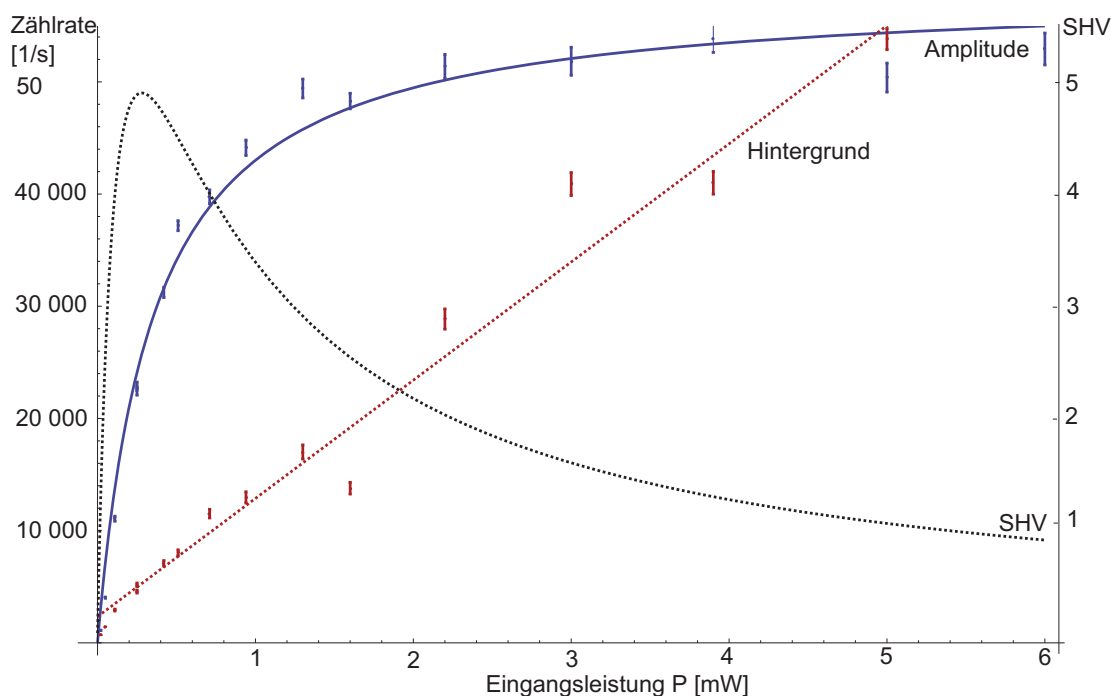


Abbildung 4.6.: Die Position und Form des Punktes wurden durch eine zweidimensionale Gaußkurve mit linearem Untergrund gefittet. Der Hintergrund (rote Messwerte) zeigt ein lineares, die Amplituden der Gaußfunktion (blaue Messwerte) ein deutlich sättigendes Verhalten. Das sich ergebende Signal zu Hintergrund Verhältnis (SHV, schwarz gepunktet, Skala am rechten Bildrand) liefert die das Kontrastverhältnis optimierende Anregungsleistung.

Hierzu wurde die auf die Probe gehende Laserleistung variiert und bei fester Tiefe jeweils eine Aufnahme über den gesamten Punkt aufgenommen. Die Positionen und Zählraten des Licht emittierenden Punktes wurden mit zweidimensionalen Gaußkurven und linearem Untergrund gefittet. Anhang A.2 zeigt, warum die Theorie die Approximation durch Gaußkurven rechtfertigt. Die sich ergebenden Amplituden und ihre zugehörigen, dem Fit entnommen Fehler sind als Messwerte (blau) dargestellt. Die entsprechenden Werte für den Untergrund sind in rot eingezeichnet.

Man erkennt ein klares Sättigungsverhalten der Zählraten mit zunehmender Laserleistung, was ein eindeutiges Indiz dafür ist, dass es sich um Fluoreszenz-, nicht um Streulicht handelt. Letzteres hängt linear von der Eingangsleistung ab. Es wurden zwei Fits an die Messwerte angelegt und ebenfalls in Abb. 4.6 eingezeichnet: Für die Zählrate des

Hintergrundes H wurde ein Fit linear in P , für die der Amplituden A ein Fit der Form

$$A(P) = A_{max} \frac{P/P_S}{1 + P/P_S} \quad (4.1)$$

angepasst, wobei P die Laserleistung ist, die unmittelbar vor dem Objektiv gemessen wurde. Man erkennt, dass beide Verläufe sich gut den Messwerten anpassen (die angepassten Bestimmtheitsmaße betragen $R_{a,H}^2 = 0.990$ für den Fit an den Hintergrund und $R_{a,A}^2 = 0.997$ für den Fit an die Amplituden). A_{max} ist die maximal zu erwartende Zählrate, d.h. die Rate, die bei einem vollkommen gesättigten Farbzentrum gemessen würde. Sie ist begrenzt durch die Effizienz des Aufbaus und wurde zu $A_{max} = (58 \pm 1)$ kC/s bestimmt. Im Vergleich dazu, liegt die Sättigungsstreurate eines einzelnen Farbzentrens bei 17 MC/s (Gruber u. a., 1997b). Ist die Anzahl der hier betrachteten Farbzentren einmal bekannt, kann die gemessene Sättigungszählrate A_S benutzt werden, um die Effizienz des Aufbaus zu bestimmen (s. Abschnitt 4.5). P_S gibt die Eingangsleistung an, bei welcher die Fluoreszenzrate die Hälfte ihres Sättigungswertes erreicht hat und wurde durch den Fit auf $P_S = (354 \pm 33)$ μ W bestimmt.

Aus dem Verhältnis

$$SHV(P) = \frac{A(P)}{H(P)} \quad (4.2)$$

wurde das Signal zu Hintergrund Verhältnis SHV bestimmt und ebenfalls in Abb. 4.6 eingezeichnet, wobei sich die entsprechende Ordinatenkalierung hierfür am rechten Bildrand befindet. Es ergibt sich ein Maximalwert von $SHV_{max} \approx 5$ bei einer Leistung von $P_{SHV}^{max} = 280$ μ W. Bei dieser Leistung empfiehlt es sich zu messen, als der Beitrag des Untergrundes im Verhältnis zum gewünschten Signal dort seinen Minimalwert erreicht. Im folgenden Abschnitt soll nun durch Korrelationsmessungen herausgefunden werden, wie viele Farbzentren zum hier beobachteten Fluoreszenzlicht beitragen.

4.3. Korrelationsmessungen

Messungen der Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung, $g^{(2)}(\tau)$, erlauben es Rückschlüsse über die Anzahl betrachteter Farbzentren zu ziehen (Kurtsiefer u. a. (2000), Brouri u. a. (2000), Sonnefraud u. a. (2008)). Für deren Aufnahmen ist die in Abb. 4.7(a) gezeigte Erweiterung des Mikroskops durchgeführt worden. Hinter der Lochblende ist ein Intensitätsinterferometer nach dem von Hanbury Brown und Twiss vorgeschlagenen Prinzip eingerichtet worden, mit dessen Hilfe Zeitdifferenzen zwischen zwei Signalen be-

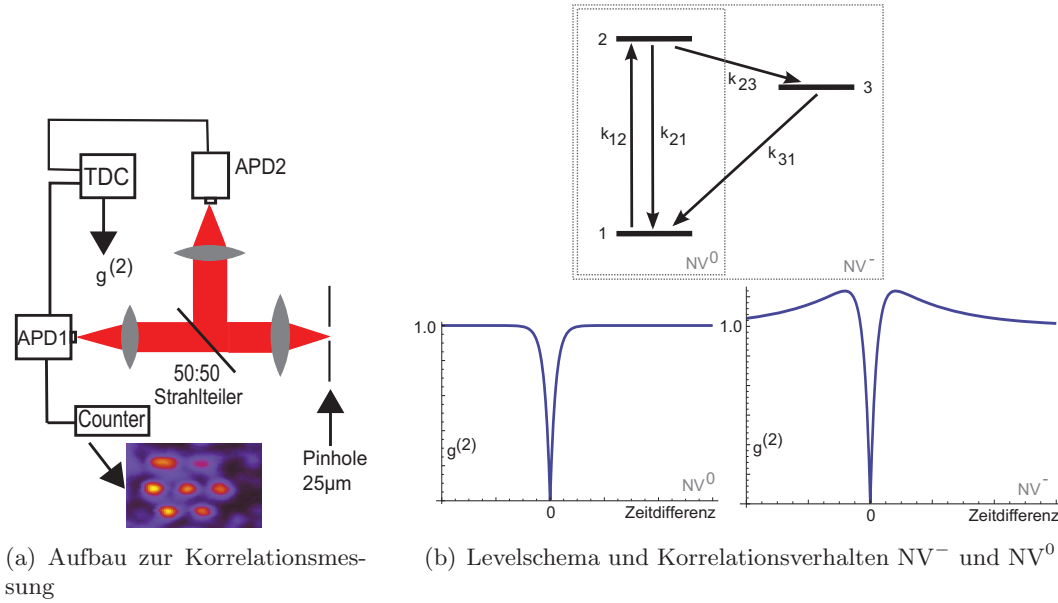


Abbildung 4.7.: Zur Aufnahme der Korrelationsmessungen wurde ein Aufbau nach dem von Hanbury Brown und Twiss vorgeschlagenen Prinzip genutzt, bei dem das beobachtete Licht gleichwahrscheinlich auf zwei unabhängige Einzelphotonenzähler gelangt. Die Zeitdifferenz zwischen je zwei Signalen wird ermittelt, wobei erwartet wird für Zeitdifferenzen um Null im Falle eines einzelnen Farbzentruns keine Ereignisse zu detektieren (Antibunching). Nach Zheng (2010) erwartet man durch unterschiedliche Levelschema (s. Text) beim NV^- zusätzlich um diese Werte herum eine höhere Wahrscheinlichkeit Photonen zu detektieren (Bunching), während dieser Verlauf für das NV^0 flach bleiben sollte.

stimmt werden können (Hanbury Brown u. a., 1957). In unserem Fall sind es die von der Diamantprobe emittierten Streu- oder Fluoreszenzlichtphotonen, welche über einen 50-50-Strahlteiler mit gleicher Wahrscheinlichkeit⁹ auf eine von zwei APDs gelangen. Dort werden zum Zeitpunkt der Detektion logische Pulse erzeugt, welche auf einen Time-to-Digital Converter (TDC)¹⁰ gegeben wurden. Dieser erlaubt es die zeitliche Differenz τ zwischen zwei Pulsen zu bestimmen. Aus technischen Gründen wurde hierfür stets eine der beiden APDs als START genutzt, die zweite als STOP. Das STOP Signal wurde ferner um eine Zeit von 75 ns verzögert um Aufnahmen beidseitig einer Zeitdifferenz von

⁹Tatsächlich ist im Experiment einer der beiden Teilstrahlengänge um etwa einen Faktor drei verlustreicher als der andere. Dieser wurde stets als START Signal genutzt.

¹⁰Es handelt sich dabei um einen zur Zeitmessung eingesetzten Frequenzzähler: SR620, Stanford Research Systems, USA

Null messen zu können. Trägt man die Häufigkeit, dass eine Zeitdifferenz τ gemessen wird als Histogramm auf, so erhält man den in Abb. 4.8 gezeigten Verlauf. Die gemessene Zeit $\tau = 75$ ns entspricht dabei physikalisch koinzidenten Ereignissen. Dort wurde einmal eine Histogrammeinteilung (Binning) in 1 ns und einmal in 4 ns vorgenommen. In beiden Fällen sieht man ein abfallendes Verhalten bei $\tau = 75$ ns, wobei das Binning von nur einer Sekunde das schmale Abfallen deutlicher wider gibt. Dieses ist offenbar besser geeignet den sich im Bereich weniger Nanosekunden abspielenden Prozess darzustellen. Im Folgenden möchte ich mich daher auf dieses Binning beziehen.

Man sieht zwei Messreihen: Die untere Messreihe verläuft konstant und zeigt, dass alle dargestellten Zeiten τ im Rahmen statistischer Schwankungen gleich verteilt vorkommen. Sie wurde im Schatten der AFM-Spitze an einer Stelle aufgenommen, an der sich kein Farbzentrum befand und beschreibt das Hintergrundsignal. Die obere Messreihe wurde an dem bereits in Abschnitt 4.2 vermessenen Punkt aufgenommen. Man sieht, dass Zeiten τ im Bereich über 100 ns in etwa gleich verteilt vorkommen. Kurz unterhalb 100 ns jedoch beobachtet man ein spitzes Abfallen der Anzahl gemessener Ereignisse mit einem Minimum bei etwa 75 ns. Diese Tatsache ist als Antibunching in der Photonenstatistik bekannt und lässt sich durch die Übergänge und deren Lebensdauern zwischen Energieniveaus der die Photonen emittierenden Systeme erklären. Für die Streuung eines Photons ist erst die Anregung des Streuzentrums notwendig. Streut man nun an lediglich einem einzigen Streuzentrum, so ist die gleichzeitige Emission zweier Photonen folglich nicht möglich, als das System zwischenzeitlich erst wieder erneut angeregt werden muss. Umso mehr Streuzentren an dem Prozess beteiligt sind, desto geringer fällt der Effekt ins Gewicht, weshalb er Aussagen über die Anzahl beteiligter Zentren ermöglicht.

Abb. 4.7(b) zeigt ein Modell des Levelschemas für das NV-Zentrum, welches für die folgende Beschreibung des Effektes zur Rate gezogen werden soll¹¹. Das Termschema des NV^- ist dort durch die vereinfachende Näherung eines Drei-Niveau-Systems widergegeben und entspricht dem in Kapitel 2.1.3 vorgestellten Drei-Niveau System (Abb. 2.6(a)) unter Zusammenfassung des angeregten Energiebandes in einen einzigen Ener-

¹¹Die folgende Herleitung ist durch Kurtsiefer u. a. (2000) motiviert, jedoch nicht identisch. Dort wird von einer thermischen Rückkopplung des metastabilen Zustands in den angeregten Zustand ausgegangen. Heute geht man hingegen von einem Zerfall des metastabilen Zustands in den Grundzustand aus (s. Kapitel 2.1.3). Dies ist im vorliegenden Modell entsprechend berücksichtigt.

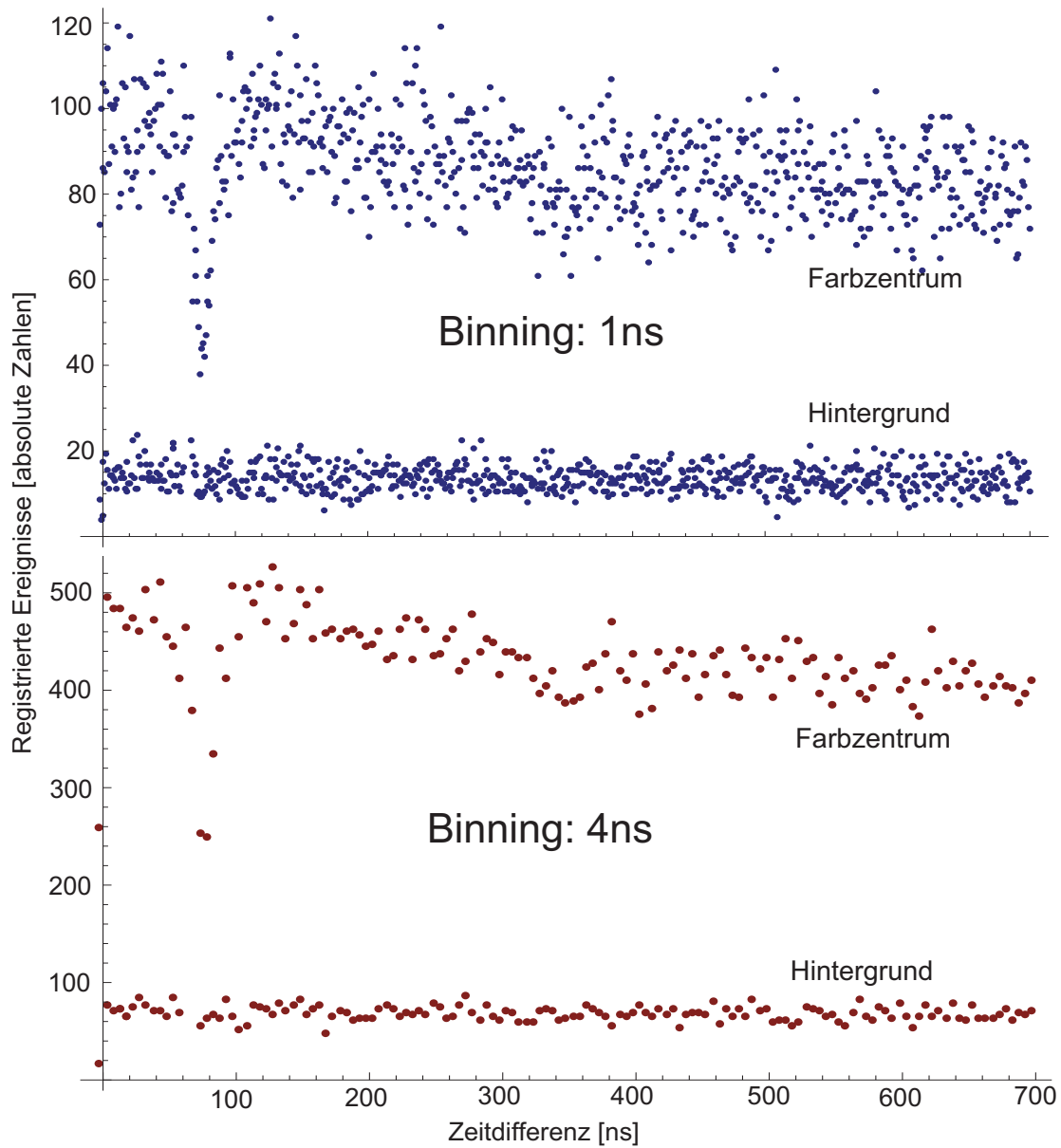


Abbildung 4.8.: Die Häufigkeit zwei Zählereignisse nach einer Zeitdifferenz τ zu beobachten zeigt an einem Farbzentrum gemessen ein spitzes Abfallen um 75 ns (entspricht aufgrund einer technischen Verzögerung des Stop-Signales der physikalischen Zeitdifferenz Null). Der Hintergrund hingegen verläuft gleichverteilt über alle Zeiten. Hier ist einmal eine Histogrammeinteilung von 1 ns und einmal von 4 ns dargestellt. Die feinere Einteilung gibt den Prozess deutlicher wieder.

giezustand. Es existiert dort ein Grundzustand, eins, von dem über Absorption eines Lichtquants aus dem Laserfeld ein Übergang in das angeregte Niveau zwei stattfinden kann. Dieser Prozess findet mit einer Übergangsrate k_{12} statt. Das angeregte Niveau zerfällt mit einer Rate k_{21} zurück in den Grundzustand oder mit einer Rate k_{23} strahlungslos in das metastabile Niveau drei. Der metastabile Zustand seinerseits zerfällt mit einer Rate k_{31} ebenfalls strahlungslos zurück in den Grundzustand. Die Besetzungsdynamik wird demnach durch

$$\begin{pmatrix} \dot{\rho}_1 \\ \dot{\rho}_2 \\ \dot{\rho}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_{12} & k_{21} & k_{31} \\ k_{12} & -k_{21} - k_{23} & 0 \\ 0 & k_{23} & -k_{31} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \rho_1 \\ \rho_2 \\ \rho_3 \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

ausgedrückt. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass das System zum Zeitpunkt τ ein Fluoreszenzphoton emittiert ist proportional zur Besetzung des Zustands zwei, $\rho_2(\tau)$. Präpariert man das System in den Grundzustand ($\rho_1(0) = 1$, $\rho_2(0) = 0$, $\rho_3(0) = 0$), so erhält man die $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion demnach durch Normieren dieser Besetzung auf die Gleichgewichtsbesetzung $\rho_2(\tau \rightarrow \infty)$. Die demgemäß normierte analytische Lösung von Gl. 4.3 lautet

$$g_{NV-}^{(2)}(\tau) = 1 + ae^{-\frac{\tau}{\tau_2}} - (1 + a)e^{-\frac{\tau}{\tau_3}} \quad (4.4)$$

, wobei die obigen Raten k_{ij} in die Berechnung der drei Variablen a , τ_2 , τ_3 ¹² eingehen. Stellt man diesen Verlauf als Funktion der Variablen τ dar, so sieht man das im rechten Teil der Abb. 4.7(b) gezeigte Verhalten. Für große Zeiten ist der Verlauf flach und schmiegt sich an den Wert eins an. Für Zeiten um $\tau = 0$ liegt ein spitzes Einbrechen auf den Wert Null, Antibunching, vor. Um diese Stelle herum beobachtet man, dass Photonen mit höherer Wahrscheinlichkeit emittiert werden als für große Zeiten. Dieses Überspringen wird als Bunching bezeichnet.

Zheng (2010) stellte anhand von Messungen fest, dass genau dieses Verhalten, das Überspringen, für NV^0 nicht vorliegt. Die Kurve geht in diesem Fall direkt in den Wert eins über. Dies ist im linken Teil der Abb. 4.7(b) gezeigt. Als physikalische Erklärung dafür

¹²Die exakte funktionelle Abhängigkeit der Koeffizienten von k_{ij} ist für diese Arbeit nicht wichtig. Die Koeffizienten werden hier anhand eines Fits bestimmt.

wird Nichtexistenz des metastabilen Niveaus drei vorgeschlagen. Die Ratengleichung nimmt dann die Form

$$\begin{pmatrix} \dot{\rho}_1 \\ \dot{\rho}_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -k_{12} & k_{21} \\ k_{12} & -k_{21} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \rho_1 \\ \rho_2 \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

mit der normierten Lösung

$$g_{NV0}^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-(k_{12}+k_{21})\cdot\tau} \quad (4.6)$$

an. Auf diese Weise lässt sich die Form der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion also nutzen, um zu bestimmen, ob es sich um NV^- oder um NV^0 handelt. Wie in Kapitel 2.1.3 erläutert, liegen in einigen Proben, wie es etwa in Nanodiamanten meist der Fall ist, die Zustände NV^0 und NV^- über lange Zeit stabil vor und lassen sich über photolumiszenz Prozesse gar ineinander überführen. In dem vorliegenden Fall ist jedoch, wie ebenfalls in Kapitel 2.1.3 erläutert, nicht von einem stabilen Vorliegen einer der beiden Zustände, sondern von einem statistischen Schwanken zwischen beiden auszugehen. Da dieses weit aus schneller angenommen ist, als die Zeit, die zur Aufnahme eines Datensatzes notwendig ist, lässt sich eine Mischung beider Zustände annehmen. Die Funktion

$$g_{NV0-}^{(2)}(\tau) = c_- \cdot g_{NV-}^{(2)}(\tau) + c_0 \cdot g_{NV0}^{(2)}(\tau) \quad (4.7)$$

$$= c_- \cdot (1 + a e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} - (1+a)e^{-\frac{\tau}{\tau_3}}) + c_0 \cdot (1 - e^{-(k_{12}+k_{21})\cdot\tau}) \quad (4.8)$$

gibt durch die Koeffizienten c_- und c_0 eine Gewichtung beider Zustände an und sollte an die Werte angefitet demnach die Berechnung des Verhältnisses beider Ladungszustände c_-/c_0 ermöglichen. Andererseits erlaubt die Form einer $g^{(2)}(\tau)$ Funktion ferner zu bestimmen, wie viele Farbzentren im vermessenen Punkt vorliegen, als die Tiefe des Antibunchings um den Wert $\tau = 0$ von der Anzahl beteiligter Streuzentren abhängt. Es gilt dort für n Streuzentren

$$g_{NV}^{(2)}(\tau = 0) = 1 - \frac{1}{n}. \quad (4.9)$$

In Abb. 4.9 sind Korrelationsmessungen dargestellt, welche am bereits in Abschnitt 4.2 beschriebenen fluoreszierenden Punkt gemessen wurden. Die Werte wurden dabei aus den Zeitdifferenzmessungen bei vier verschiedenen Laserleistungen bestimmt. Die Umrechnung der Zeitdifferenzen in die zugehörigen Korrelationswerte erfolgte dabei nach der von Brouri u. a. (2000) motivierten Methode, deren Grundannahme die Unabhän-

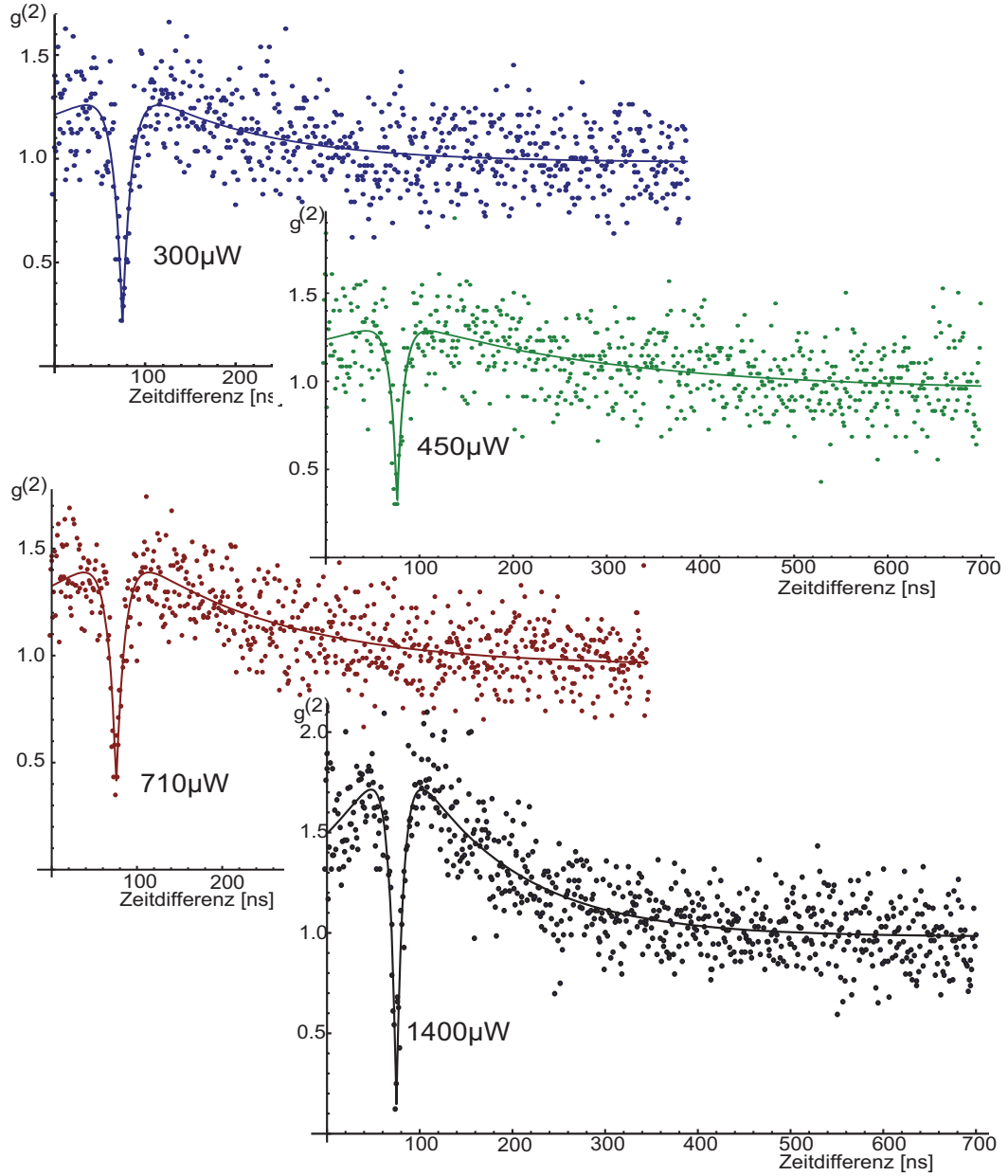


Abbildung 4.9.: Gezeigt sind $g^{(2)}(\tau)$ Messungen, aufgenommen bei vier unterschiedlichen Leistungen an demselben Farbzentrum. Die Werte bei $\tau = 75$ ns (physikalischer Null) liegen je unter $1/2$, fallen aufgrund experimenteller Einflüsse jedoch nicht bis auf Null ab. Es lässt sich auf Vorliegen eines einzelnen Farbzentrums schließen. Die Fits zeigen mit steigender Laserleistung schmalere Einbrüche und deutlicheres Bunching.

gigkeit von Hintergrundzählrate und eigentlicher Signalzählrate ist. Dies erlaubt es die zufälligen Koinzidenzen aufgrund des Hintergrundes durch den Ausdruck

$$g_{\text{Messung}}^{(2)}(\tau) = \frac{C(\tau) - (1 - \sigma^2)}{\sigma^2} \text{ mit} \quad (4.10)$$

$$\sigma = \frac{\text{Signal}}{\text{Signal} + \text{Hintergrund}} \quad (4.11)$$

zu eliminieren, wobei $C(\tau)$ die gemäß Poissonscher Statistik normierte Zählrate des Zeitintervalls τ ist. σ , welches das Signal zu Hintergrund Verhältnis einfließen lässt, wurde für jede der vermessenen Leistungen aus den Abb. 4.6 zugrundeliegenden Daten bestimmt.

Es fällt auf, dass trotz Hintergrundkorrektur die Werte an der Stelle des Abfallens nicht exakt bis auf Null reichen. Der geringste gemessene Wert liegt bei 11 % und wurde bei 1.4 mW aufgenommen. Zieht man allerdings experimentelle Fehlerquellen wie Schwanken der Laserleistung und mechanisches Driften der Scanposition¹³ sowie mögliche elektronische Fehlerquellen bei APDs und TDC mit in Betracht, reicht dies aus, um festzustellen, dass lediglich ein einziges Farbzentrum vorliegt. Gemäß Gl. 4.9 sollten bereits zwei Farbzentren auf einen Wert von lediglich 0.5 abfallen, was in allen Messungen unterschritten wird.

Legt man nun einen Fit der Form aus Gl. 4.7 an die Werte an um das Verhältnis der Ladungszustände zu bestimmen, wird zwar der Verlauf der Messwerte erwartungsgemäß widergegeben, die Fehler der Fitparameter jedoch fallen aufgrund der hohen Anzahl an Freiheitsgraden und des relativ weiten Streuens der Messwerte unbrauchbar hoch aus. Der so bestimmte Anteil von NV^- liegt für die bei 1400 μW gemessenen Werte bei 0.98, der für NV^0 dementsprechend bei 0.02. Die Fehler auf diese Werte liegen jedoch bei über 100 %. Da die Bunchingeffekte deutlich erkennbar sind, wurde die Form des Fits daher auf Gl. 4.4, die des reinen NV^- Zustands reduziert. Dies erlaubt den Erhalt aussagekräftiger Fitparameter. Um das etwaige gleichzeitige Vorliegen mehrerer Farbzentren zu berücksichtigen, wurde ein weiterer Wichtungsfaktor eingeführt. Der tatsächlich angelegte Verlauf entspricht somit

$$g_{NV^-}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{n} \cdot (1 + ae^{-\frac{\tau}{\tau_2}} - (1 + a)e^{-\frac{\tau}{\tau_3}}) + \frac{n-1}{n}. \quad (4.12)$$

¹³Die $g^{(2)}$ -Messungen dauerten jeweils in etwa eine Stunde. Um Langzeitfehler zu minimieren wurden sie in je vier 15 minütige Messungen unterteilt und die Parameter Position und Laserleistung überprüft und ggf. korrigiert. Während die Position dabei ausreichend konstant und das Farbzentrum im Fokus blieb, zeigte die Laserleistung Drifts von einigen Prozent.

Auf diese Weise wird berücksichtigt, dass für n Farbzentren $n - 1$ einen zusätzlichen bis hier nicht korrigierten Hintergrund erzeugen und so verhindern, dass das System auf Null abfallen kann.

Abb. 4.10 zeigt die so erhaltenen Verläufe im Vergleich, wobei deutlich Bunching-Effekte um eine abfallende Antibunching-Region beobachtbar sind. Die Fits fallen gemäß den

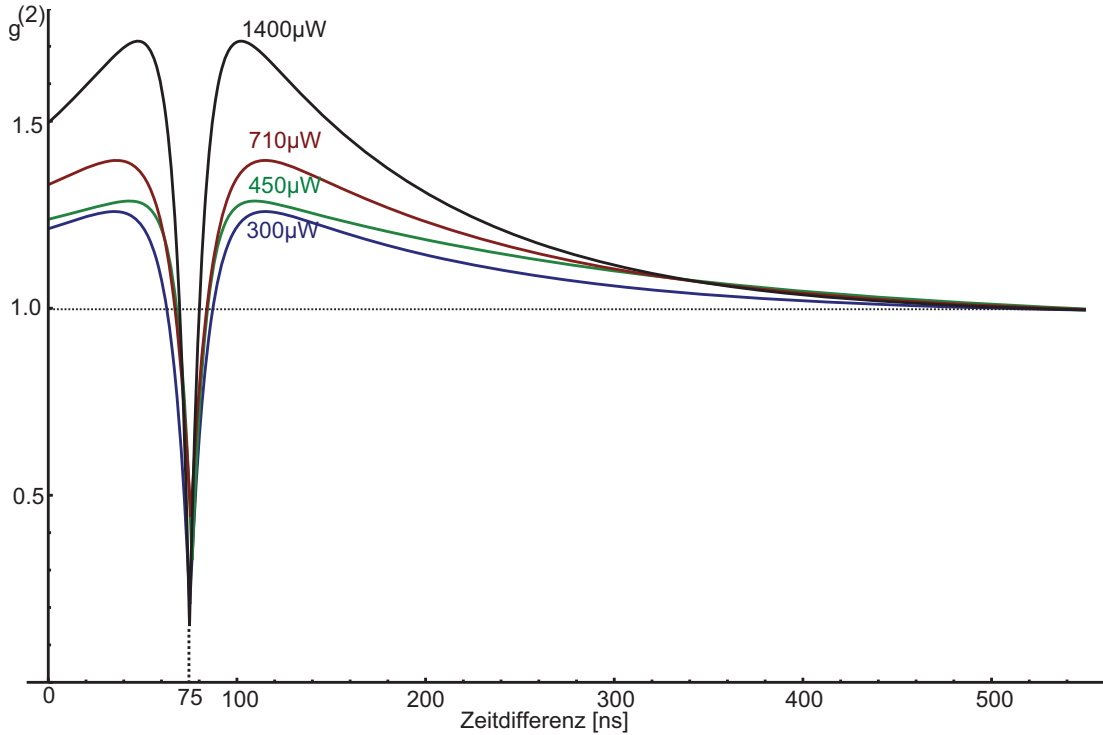


Abbildung 4.10.: Entsprechend der Messwerte zeigen auch die Fitkurven kein Abfallen bis auf den Wert Null, ergeben jedoch, dass ein einzelnes Farbzentrum beobachtet wird. Mit zunehmender Laserleistung ändern sich die Pumpraten innerhalb des Drei-Niveau-Systems, die abfallenden Flanken werden schmaler und der Bunching-Effekt deutlicher.

Messwerten nicht bis auf Null, liefern jedoch alle Werte für n , die unter Berücksichtigung oben genannter experimenteller Fehlerquellen auf das Vorliegen eines einzelnen Farbzentrons schließen lassen (s. Anhang A.3). Mit zunehmender Leistung werden die Einbrecher schmaler und die Bunchingeffekte höher, was sich anschaulich im Drei-Niveau-System an der höheren Pumprate k_{12} mit steigender Laserleistung erklären lässt. Umso höher diese ist, desto häufiger befindet sich das System im Zustand zwei, wodurch sich der Verzögerungseffekt durch die Besetzung des Niveaus drei ebenfalls verstärkt. Für

die Fitparameter τ_2 , τ_3 und a erwartet man demnach mit steigender Leistung ein Abfallen. Diese sind im Anhang A.3 gelistet.

Zusammenfassend liefern die Resultate der Korrelationsmessungen zwei klare Ergebnisse: Zum einen zeigt die Tiefe des Abfallens für geringe τ , dass es sich bei der Betrachtung des Fluoreszenzlichtes um das eines einzigen Farbzentrums handelt. Dies erlaubt es nun mit den aus Abschnitt 4.2 gewonnenen Erkenntnissen die Effizienz des Aufbaus zu bestimmen, wie es in Abschnitt 4.5 gemacht wird. Zum anderen lässt sich anhand der Form der Verläufe klar erkennen, dass das Zentrum einen großen Teil seiner Existenzzeit im negativ geladenen Zustand vorliegt, während das exakte Verhältnis der Ladungszustände sich leider nicht bestimmen ließ. Weitere Stabilisierung der Laserleistung könnte durch Reduktion des Schwankens der Messwerte die vorgeschlagene Methode zum Vermessen des Verhältnisses jedoch ermöglichen.

4.4. Sättigung und Korrelation mehrerer Farbzentren

Um eine Auskunft darüber zu erhalten, wie viele Farbzentren zum Fluoreszenzlicht der einzelnen Punkte des vermessenen Musters (aus Abb. 4.4) beitragen, wurden für alle Punkte des Musters Sättigungskurven aufgenommen und miteinander verglichen. Das Resultat dieser Messungen zeigt Abb. 4.11. Hierzu wurden Aufnahmen des gesamten Musters bei verschiedenen Laserleistungen durchgeführt und analog zur Vorgehensweise in Kapitel 4.2 Gaußkurven mit linearem Untergrund an die Positionen der fluoreszierenden Punkte gelegt. Die Amplituden der Gaußkurven wurden entsprechend in Abhängigkeit der Eingangsleistung P unmittelbar vor dem Objektiv aufgetragen (Messwerte Abb. 4.11). Für alle sieben Verläufe ist ein klar sättigendes Verhalten zu erkennen. Die Anzahl an Farbzentren, die zur Fluoreszenz der einzelnen sieben Punkte beiträgt, bestimmt dabei die jeweilige Sättigungszählrate A_{max}^i . Im idealen Falle sollten die Abstände dann ein ganzzahliges Vielfaches der am einzelnen Farbzentrum gemessenen Sättigungszählrate sein (diese wurde in Kapitel 4.2 auf (58 ± 1) kC/s bestimmt). Um die einzelnen A_{max}^i zu bestimmen, wurden zunächst die Messwerte jedes Punktes des Musters gemäß Gl. 4.1 gefittet. Der axiale Abstand zwischen einzelnen Farbzentren, die zu jedem der sieben fluoreszierenden Punkte beitragen, liegt aufgrund der geringen Implantationsenergien unterhalb der Beugungsgrenze des Aufbaus. In erster Näherung hängt die von jedem Farbzentrum wahrgenommene Laserleistung somit nicht von seiner

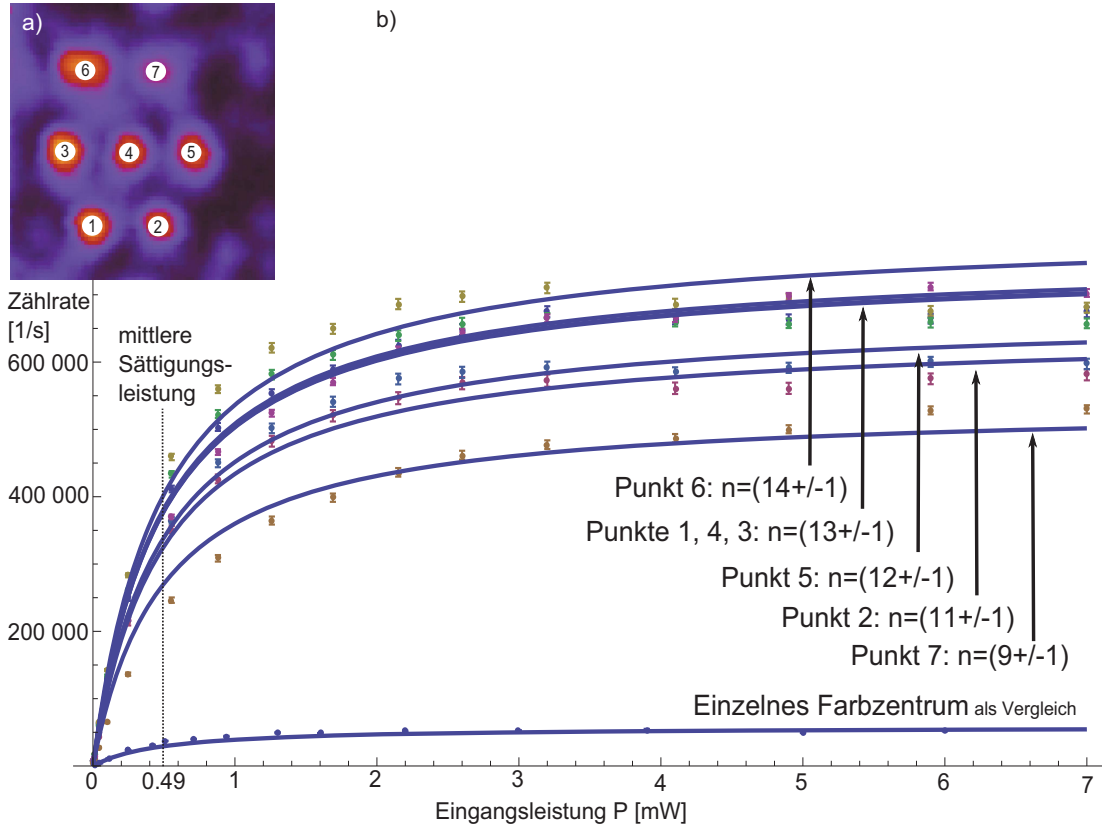


Abbildung 4.11.: a) Nummerierung der einzelnen Punkte des Musters. b) Diese wurden bezüglich ihrer Sättigungszählraten bei gemittelter Sättigungsleistung vermessen und die Anzahl n jeweils beteiligter Farbzentren über Vergleich mit der bekannten Zählrate eines einzelnen bestimmt.

Position ab, weshalb auch die jeweiligen Sättigungsleistungen P_S^i , bei welchen die Farbzentren in Sättigung gehen, im Rahmen dieser Näherung übereinstimmen sollten. Es wurde daher zunächst die mittlere Sättigungsleistung zu $\bar{P}_S = (491 \pm 27) \mu\text{W}$ bestimmt und diese als fester Wert an die in Abb. 4.11 gezeichneten Fitfunktionen übergeben. Die Ergebnisse sind die in Abb. 4.11 dargestellten Verläufe.

Der erwartet diskrete Abstand der einzelnen Kurven bei gesättigter Anregung geht in experimentellen Fehlerquellen unter. Betrachtet man, wie hier, die Fluoreszenz mehrerer Farbzentren im Vergleich mit der eines einzelnen, macht etwa ein geringes Schwanken der Laserleistung bereits einen beachtlichen Unterschied der gemessenen Zählraten. Die Kurven für drei der sieben Werte fallen praktisch überein, die anderen vier nehmen Sättigungszählraten darüber und darunter an. Ein Vergleich mit dem einzelnen Farb-

zentruns (unterste Linie in Abb. 4.11) zeigt, dass die Anzahl der beitragenden Zentren zwischen acht und fünfzehn liegt. Die auf dieser Basis berechneten Anzahlen der beitragenden Farbzentren sind ebenfalls Abb. 4.11 zu entnehmen, wobei die Angaben auf natürliche Zahlen gerundet und die (aus den Fits stammenden) Fehler ganzzahlig aufgeschlagen sind.

Um zu überprüfen, ob die Ergebnisse in Einklang mit Korrelationsmessungen zu bringen sind, wurde an einem der Punkte des Musters (entsprechend der Nummerierung in Teil b) der Abb. 4.12 Punkt sieben) eine $g^{(2)}(\tau)$ Messung durchgeführt. Die Ergebnisse zeigt Abb. 4.12. Der Fit wurde entsprechend Gl. 4.12 berechnet und liefert aufgrund

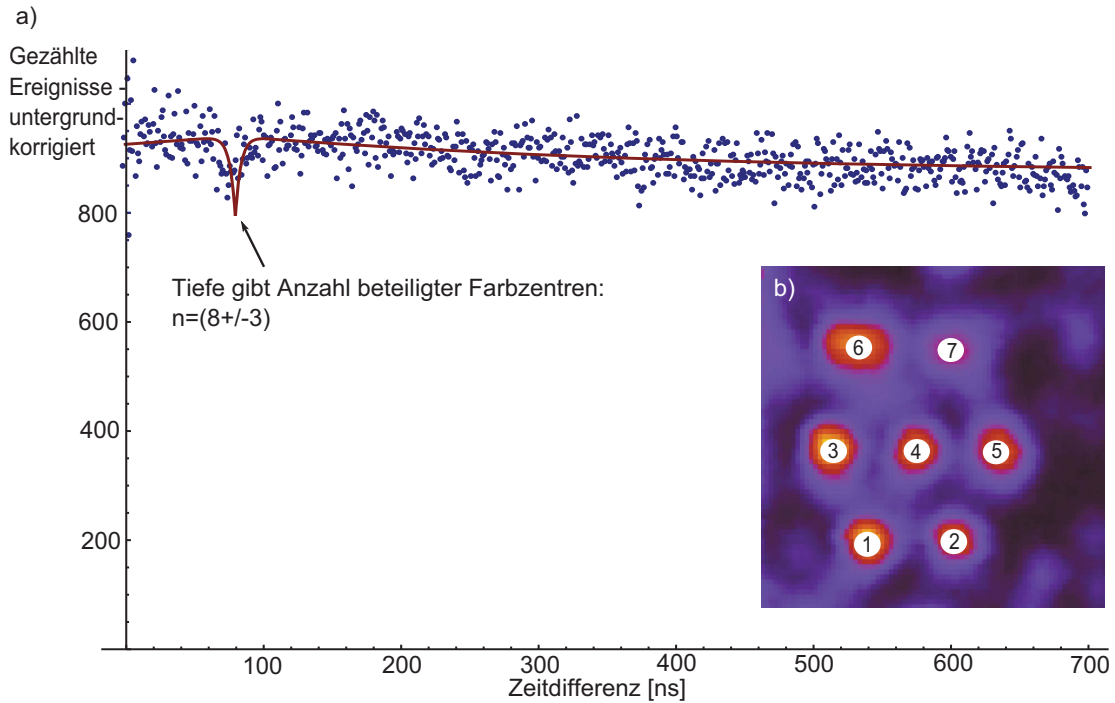


Abbildung 4.12.: a) Die $g^{(2)}(\tau)$ Messwerte, welche an einem der Punkte des Musters (Punkt sieben im nummerierten Muster b)) bestimmt wurden, zeigen ein leichtes Abfallen um physikalisch koinzidente Ereignisse. Der Fit an die Werte liefert aus der Tiefe dieses Abfallens, dass $n = (8 \pm 3)$ Farbzentren hierzu beitragen. Dies stimmt mit der aus dem Sättigungsverhalten bestimmten Anzahl von (9 ± 1) überein.

der Tiefe des Antibunching-Effektes als Zahl beteiligter Farbzentren einen Wert von $n = (8 \pm 3)$. Innerhalb der Fehler, die in beiden Fällen aus den jeweiligen Fits herrüh-

ren, stimmt dies offensichtlich mit dem zuvor bestimmten Wert von (9 ± 1) überein.

Das zeigt, dass somit ein wichtiges Ziel des Aufbaus erfüllt werden konnte: Die $g^{(2)}(\tau)$ Messungen liefern mit dem Fluoreszenzverhalten konsistente Ergebnisse und die Anzahl beobachteter Farbzentren lässt sich nun über diese Messungen bestimmen.

Die Größe der Messfehler ist im Falle der Korrelationsmessungen dabei auf die lange notwendige Messzeit zur Aufnahme der Werte und der damit verbundenen hohen Anfälligkeit für Fehlerquellen zurückzuführen. Im Falle der Fluoreszenzmessung zeigt sich bei Betrachtung des Musters, dass einige der Punkte - insbesondere Punkt sechs - nicht radialsymmetrisch sind. Dies spricht dafür, dass dort beteiligte Farbzentren in einem Abstand knapp unterhalb der Beugungsgrenze benachbart sind. Dies mindert die Güte des angepassten Gaußfits zu deren Positions- und Zählratenbestimmung. Im nächsten Kapitel soll daher die erreichbare Auflösung des Aufbau, lateral sowie auch axial, bestimmt werden.

4.5. Auflösungsvermögen, Detektionseffizienz und Stabilität

Zur Bestimmung des Auflösungsvermögens des Aufbaus wurden Messungen am in Kapitel 4.2, Abb. 4.5, vorgestellten einzelnen Farbzentrum durchgeführt. Da es sich hier um das Fluoreszenzlicht eines einzigen Streuzentrums handelt, ist diese Messung nicht durch eine räumliche Verteilung sondern allein durch das Auflösungsvermögen des Aufbaus begrenzt. Bei etwa $280 \mu\text{W}$ (maximales Signal zu Hintergrund Verhältnis) wurden Aufnahmen des Punktes in verschiedenen Tiefenebenen vorgenommen. Die Form wurde abermals mit einer zweidimensionalen Gaußfunktion bestimmt und deren Amplituden in Abhängigkeit der Tiefenebene z aufgetragen. Auf diese Weise ergibt sich ein Tiefenprofil, wie es in Teil c) der Abb. 4.13 gezeigt ist. Die so bestimmten Messwerte wurden mit einer eindimensionalen Gaußfunktion genähert (Anhang A.2 rechtfertigt diese Approximation) und die Breite mittels des Rayleigh-Kriteriums ermittelt. Dies wird als Auflösungsvermögen entlang axialer Richtung z interpretiert. Die Breite gemäß des Rayleigh Kriteriums der zweidimensionalen Gaußfunktion aus der Tiefenebene maximalen Signals liefert das zugehörige laterale Auflösungsvermögen. Die Messwerte und die angepasste Funktion in dieser Ebene zeigen Teil b) bzw. a) der Abb. 4.13. Die sich so ergebenden Auflösungen sind in Abb. 4.14 zusammengefasst. Neben den auf

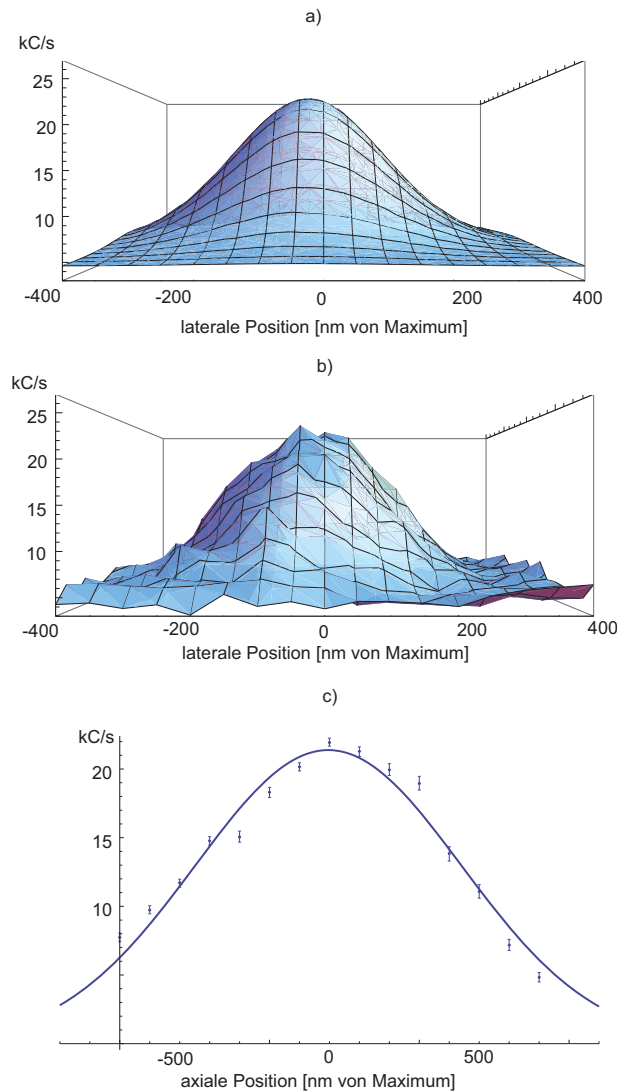


Abbildung 4.13.: a) Die Abhängigkeit der Zählrate von der lateralen Position als gefitteter Verlauf. Zur Bestimmung der lateralen Auflösung kann die Breite dieser Fits herangezogen werden. Die sich so ergebenden Werte zeigt Abb. 4.14.
 b) Die Abhängigkeit der Zählrate von der lateralen Position als Darstellung der Messwerte. Diese wurden bei $280 \mu\text{W}$ aufgenommen.
 c) Eine Auftragung der Amplituden der in a) gezeigten Fitfunktionen gegen ihre axiale Position als Abstand von der Fokalebene.

diese Weise bestimmten Verläufen der lateralen und axialen Fits (blau eingezeichnet) sind die zugehörigen Breiten und zwei theoretisch bestimmte Kurven dargestellt. Die-

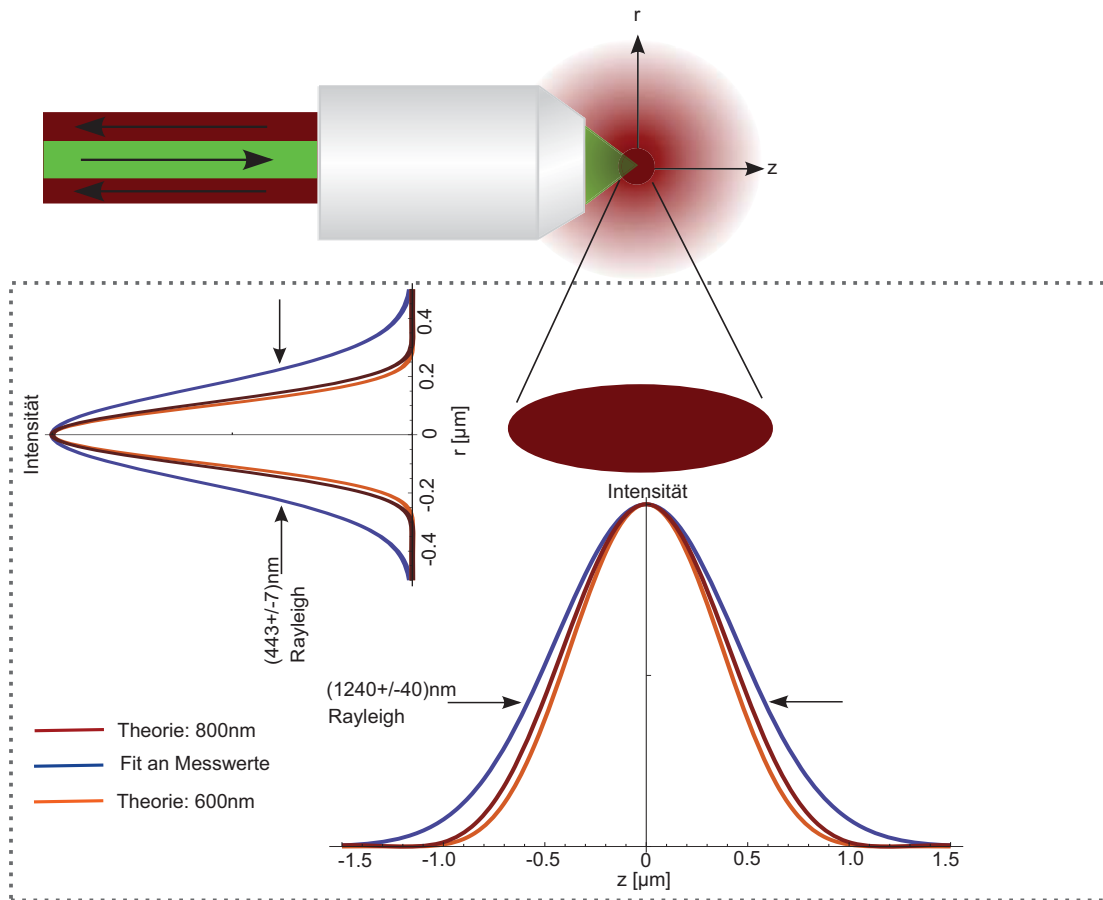


Abbildung 4.14.: Die sich ergebenden lateralen und axialen Verläufe sind den theoretischen Erwartungen für die Emission von Licht der Wellenlängen 600 nm bzw. 800 nm gegenüber gestellt. In beiden Fällen liegen die gemessenen Verläufe außerhalb der theoretischen Vorhersagen und die so bestimmten Breiten weichen um etwa 50 % bzw. 20 % ab.

se entsprechen den theoretischen Erwartungen für die Emission von Licht von 600 nm bzw. 800 nm Wellenlänge, gemessen durch ein konfokales Mikroskop, dessen Objektiv die numerische Apertur unseres Aufbaus (0.95) besitzt. Da das von einem Farbzentrum emittierte Licht nicht monochromatisch ist sondern über einen in etwa in diesen Grenzen liegenden spektralen Bereich verläuft, sollte der Verlauf der Fits zwischen den beiden theoretischen Kurven liegen, maßgeblich aber durch die größte Wellenlänge des Spektrums limitiert sein. Man erwartet also einen Verlauf, der geringfügig schmaler als

die theoretische Kurve für eine Wellenlänge von 800 nm ist.

Wie man sieht, sind diese Erwartungen für beide Verläufe nicht erfüllt. In beiden Fällen liegen die experimentellen Kurven außerhalb der theoretischen Verläufe. Die bestimmten Breiten betragen (1240 ± 40) nm im axialen und (443 ± 7) nm im lateralen Fall und liegen somit etwa 20 % bzw. 50 % außerhalb der theoretischen Erwartungen (vgl. Abb. 3.3). Verschiedene Ursachen können hierfür in Betracht gezogen werden. Zwei maßgebliche Gründe mögen dabei etwa eine etwaige Misausrichtung der Lochblenden-Ebene zur Fokusebene des Objektivs oder eine mögliche (De-)Fokussierung des Anregungslichtes sein. In beiden Situationen würde das Licht nicht exakt aus der Ebene gesammelt, in welche das Anregungslicht fällt, was eine Verminderung des konfokalen Effektes bewirkte. Ein zweiter Punkt mag die Approximation der fluoreszierenden Punkte als zweidimensionale Gaußfunktion sein. Genau betrachtet, sollte der Verlauf im idealen Fall einer quadratischen Airy-Funktion folgen. Die Breite der Funktion kann auf diese Weise leicht überschätzt werden (Anhang A.2 verdeutlicht diese Annahme anhand der Funktionsverläufe). Auch die Ausleuchtung des Objektivs durch das Anregungslicht wirkt sich auf das Auflösungsvermögen aus, sollte allerdings in unserem Falle - da es weit über seine Apertur ausgeleuchtet ist - zu keinem nennenswerten Verlust führen und würde sich insbesondere stärker auf die axiale Auflösung auswirken (diese hängt quadratisch von der NA des Objektivs ab und spürt so eine Verminderung der effektiven NA stärker, als im linearen Falle der lateralen Auflösung). Zusammenfassend deuten diese Ergebnisse jedoch stark auf eine nicht optimale Justage des Aufbaus hin.

Die Photonensammeleffizienz unseres Aufbaus lässt sich ebenfalls berechnen. Hierzu kann ausgenutzt werden, dass die Sättigungsstreurate eines einzelnen Farbzentrums bereits experimentell auf 1.7 MC/s bestimmt wurde (etwa in Gruber u. a. (1997a)). Da aus Kapitel 4.3 bekannt ist, dass die in Kapitel 4.2 gemessene Sättigungsstreurate $((58 \pm 1) \text{ kC/s})$ von einem einzigen Farbzentrum allein kommt, lässt sich die Fluoreszenzdetektionseffizienz unseres Aufbaus zu

$$\text{Effizienz} = (0.34 \pm 0.01) \% \quad (4.13)$$

bestimmen. Zwar erscheint dies zunächst niedrig, doch so muss in Betracht gezogen werden, dass zahlreiche Faktoren die Effizienz mindern, wie etwa die NA des Objektivs den Raumwinkel begrenzt und Linsen, Spiegel, Objektiv selbst und Lochblende je

zu Verlusten führen. Diese sollen im Folgenden abgeschätzt werden:

Der Raumwinkel, aus dem das Objektiv Licht sammelt, beträgt etwa 34 %¹⁴, die Transmission etwa 85 %¹⁵. Die Reflektivität der Spiegel ist mit 96 %, die Gesamttransmission der Linsen sowie des Beamsamplers sind mit 90 % und die des Filters bei nicht geblockten Wellenlängen ist mit 98 % spezifiziert. Zusätzlich wird durch den Filter ein Teil des Emissionsspektrum abgeschnitten. Dies geschieht für Wellenlängen unterhalb von 641 nm und beläuft sich (vgl. Abb. 2.5) auf ungefähr 10 %. Die Detektionseffizienz der APD liegt im Bereich der emittierten Wellenlängen im Mittel bei ungefähr 50 %. Der Anteil des Lichtes, der die Lochblende passiert, wurde für das Anregungslicht vermessen und lag bei 70 %. Es ist davon auszugehen, dass die Werte für das Fluoreszenzspektrum abermals geringer sind. Geht man zusätzlich von einem Verlust durch Dreck, Kratzern etc. von 5 % pro optische Komponente aus, so ergibt sich eine erreichbare Effizienz von etwa 2 %. Dies ist ungefähr das sechsfache des gemessenen Wertes.

Zusammen mit der unter den theoretischen Erwartungen liegenden Auflösung spricht dies für eine nicht optimale Justage des Aufbaus. Die Effizienz liegt somit zwar im typischen Bereich vergleichbarer Apparaturen (Wittmann (2005), Gruber u. a. (1997a)), scheint durch eine sorgfältige Justage jedoch weiter verbesserbar.

Um die Langzeitstabilität des Aufbaus zu prüfen, wurden zwei Arten von Messungen vorgenommen. Einerseits wurden Messungen erhoben, in welchen ein Bereich über mehrere Stunden hinweg mehrfach gerastert wurde. Andererseits wurden Aufnahmen durchgeführt, zwischen denen die Probe um Distanzen einiger zehn Mikrometer verschoben und wieder in die ursprüngliche Position zurück verfahren wurde. Die Aufnahmen wurden jeweils miteinander verglichen und die Abweichungen untereinander über Fits an charakteristische Stellen der Aufnahmen bestimmt. In allen Fällen lag die Standardabweichung der Positionen deutlich unter 100 nm und damit weit unter der Auflösungsbegrenzung dieser Bestimmungsmethode. Dies setzt somit lediglich eine obere Grenze für die Wiederholgenauigkeit. Es liegt nahe zu vermuten, dass die tatsächliche Genauigkeit des Aufbaus ungleich besser ist. Die Auflösung des Verschiebetisches beträgt den Herstellerangaben zur Folge 1 nm, die Wiederholbarkeit 25 nm.

¹⁴Bei einer numerischen Apertur NA und einem Brechungsindex von ungefähr eins berechnet sich der Raumwinkel durch $2 \cdot \pi(1 - \cos(\arcsin(NA)))$.

¹⁵Herstellerangaben

4.6. Messungen unter Vakuumbedingungen

Es gibt zwei Punkte, die bei der Integration eines für den Gebrauch an Luft gedachten Objektives in ein Ultrahochvakuum zu bedenken sind. Ein Punkt ist, dass ein etwaiges Ausdünsten des Objektives die erreichbaren Drücke verschlechtern kann. Dies könnte etwa durch schwer auspumpbare oder nur sehr langsam ausgasende Hohlräume im Objektiv passieren. Andererseits ist es denkbar, dass Klebstoffe, Bindemittel oder andere chemische Substanzen des Objektives bei sehr niedrigen Drücken frei gesetzt werden. Um beides zu testen, wurde ein Massenspektrum des Objektives bei gleichzeitigem Abpumpen aufgenommen. Den Bereich, in welchem signifikante Partialdrücke beobachtbar waren zeigt Abb. 4.15. Für größere Massen- zu Ladungsverhältnisse konnten keine nennenswerten Partialdrücke beobachtet werden. Der Gesamtdruck wird dominiert von einer sehr deutlichen Erhebung bei den Massen- zu Ladungsverhältnissen 17 und 18, welche typisch für Massenspektren in Vakuumkammern sind. Es handelt sich dabei um Wassereinlagerungen, die langsam ausgasen. Ein Vergleich des Spektrums mit dem ohne Objektiv aufgenommenen Hintergrundspektrum zeigt eine weite Übereinstimmung. Mit der Genauigkeit von etwa $1 \cdot 10^{-8}$ mbar konnten so weder stark ausgasende Stoffe beobachtet werden, noch scheinen Zwischenräumen im Objektiv vorzuliegen, die den Druck messbar anhebende Mengen eingeschlossener Luft freisetzen. Andernfalls wären die Erhebungen bei den typischen Bestandteilen von Luft (maßgeblich Stickstoff und Sauerstoff) höher und würden den Gesamtdruck dominieren.

Um die Funktionsfähigkeit des Objektives im Vakuum zu testen, wurde das bereits vorgestellte Muster aus Abb. 4.4 erneut aufgenommen, nun unter einem Druck von $8 \cdot 10^{-7}$ mbar. Eine Gegenüberstellung beider Ergebnisse zeigt Abb. 4.16. Das Muster ist auch im UHV klar zu erkennen, erscheint etwas weniger glatt. Ursache sind unterschiedliche Laserleistungen der beiden Aufnahmen, welche das Signal-zu-Hintergrund Verhältnis im Falle der UHV Aufnahme zu weniger günstigen Werten verschieben. Die laterale Auflösung des Aufbaus stimmt innerhalb ihrer Fehler gut mit der an Luft bestimmten Auflösung überein¹⁶, was davon zeugt, dass das Objektiv keinen Schaden durch das Einbringen ins Vakuum genommen hat. Analog zu Kapitel 4.5 wurde die

¹⁶Da Luft und Vakuum sich kaum in ihren Brechungsindizes unterscheiden ist nicht von einer merkbaren Änderung der Auflösung auszugehen.

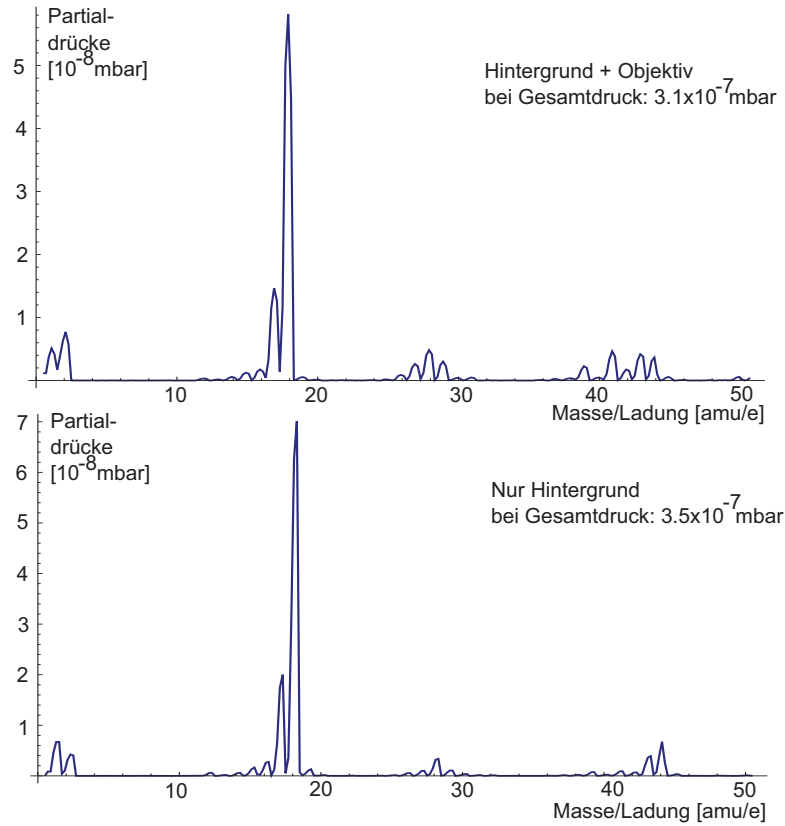


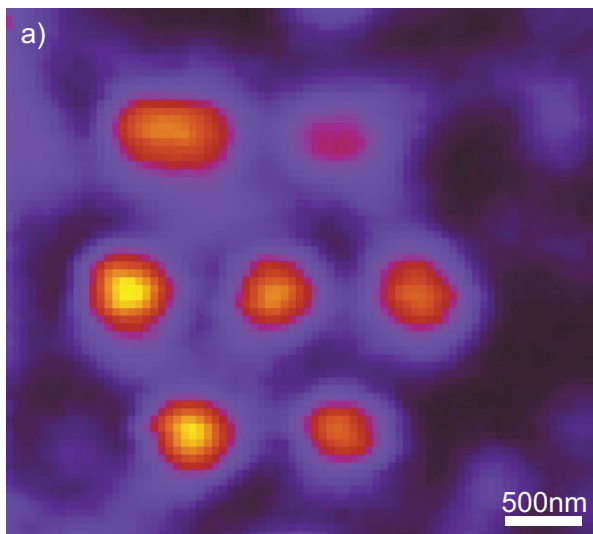
Abbildung 4.15.: Der Gesamtdruck der Kammer, in der das Spektrum des Objektives gemessen wurde, ist durch Wasserausdünstungen (Massenzahlen 17 und 18) dominiert. Der Vergleich dieses Spektrums mit dem Hintergrund (Kammer ohne Objektiv) zeigt, dass mit einer Genauigkeit von etwa $1 \cdot 10^{-8}$ mbar keine vom Objektiv ausgasenden Substanzen freigesetzt werden. Eine Druckverschlechterung durch Ausgasungen von etwaigen Lufteinschlüssen kann ebenfalls nicht beobachtet werden.

laterale Auflösung an einem isolierten Farbzentrum (aus Abb. 4.5) bestimmt und liefert einen Wert von

$$Res_{UV} = (426 \pm 20) \text{ nm} \quad (4.14)$$

(im Vergleich zu $(443 \pm 7) \text{ nm}$ für den Fall an Luft). Zusammenfassend stellt sich heraus, dass es weder zu einer Beeinträchtigung des Vakuums durch das Objektiv, noch des Objektives durch das Vakuum kommt. Die erreichbaren Auflösungen stimmen für die Fälle mit und ohne Luft überein.

Aufnahme unter Normalbedingungen



Aufnahme bei $8 \cdot 10^{-7}$ mbar

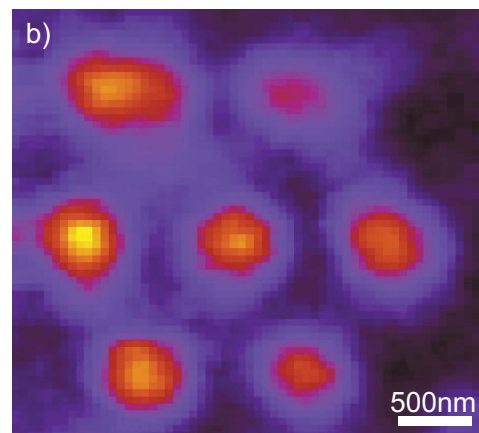


Abbildung 4.16.: Das Muster ist in beiden Fällen, an Luft (links) und bei einem Druck von $8 \cdot 10^{-7}$ mbar (rechts), mit gleicher Auflösung erkennbar. Die unterschiedliche Glätte der beiden Aufnahmen rührt aus ungleichen Laserleistung und damit verschiedenen Signal zu Hintergrund Verhältnissen her.

5

Ionennachweis durch Rasterkraftmikroskopie

Neben all den Vorteilen, die Farbzentren in Diamant bieten, bringen sie auch einen Nachteil mit sich: Die Erzeugungseffizienz, d.h. der Anteil der implantierten Ionen, die letztendlich zu Farbzentren führen, liegt lediglich bei einigen Prozent für Implantationsenergien im keV Bereich. Andererseits dürfen diese nicht in die MeV Region angehoben werden, wo Erzeugungseffizienzen von etwa 50 % erreichbar sind (s. Abb. 2.3), als hierdurch Straggling-Effekte die Auflösung um Größenordnungen von der gewünschten Nanometerskala verschieben würden (s. Kapitel 2.1.2). Verschiedene Techniken werden derzeit erprobt die erzielbare Effizienz zu steigern und nicht zuletzt bietet der in den vorangehenden beiden Kapiteln vorgestellte Aufbau für zukünftige Implantationsreihen die Möglichkeit den Erfolg des Ionenbeschusses und der Konversion in Farbzentren zu überprüfen. Ggf. kann auf diese Weise direkt nachimplantiert und die geringe Erzeugungsrate so umgangen werden. Da die praktische Gestaltung dieses Prozesses einige Herausforderungen mit sich bringen wird, soll im Folgenden eine Methode demonstriert werden, die in der Lage ist unabhängig einer Konversionseffizienz zu zeigen, dass es mit der vorgestellten Apparatur möglich ist, deterministisch in Festkörper zu implantieren. Grundlage der noch andauernden Messreihen ist der Beschuss eines Kalziumfluorid-Kristalls (CaF_2) und der anschließende Nachweis mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM). Hierzu soll zunächst die in Kapitel 1 angerissene Funktionsweise eines AFMs erweitert, dann die den Experimenten zugrundeliegenden Ideen vorgestellt und der aktuelle Stand der Messungen sowie der sich anschließenden Schritte aufgezeigt werden.

5.1. Die Funktionsweise des Rasterkraftmikroskops

Wie in Kapitel 1 erläutert, handelt es sich bei der AFM um eine Technik aus der Raster-Sonden-Mikroskopie, bei der die Sonde durch eine federnd gehaltene Spitze, genannt Cantilever, realisiert ist. Als Reaktion auf Kräfte, die gegen die Spitze bei Annäherung

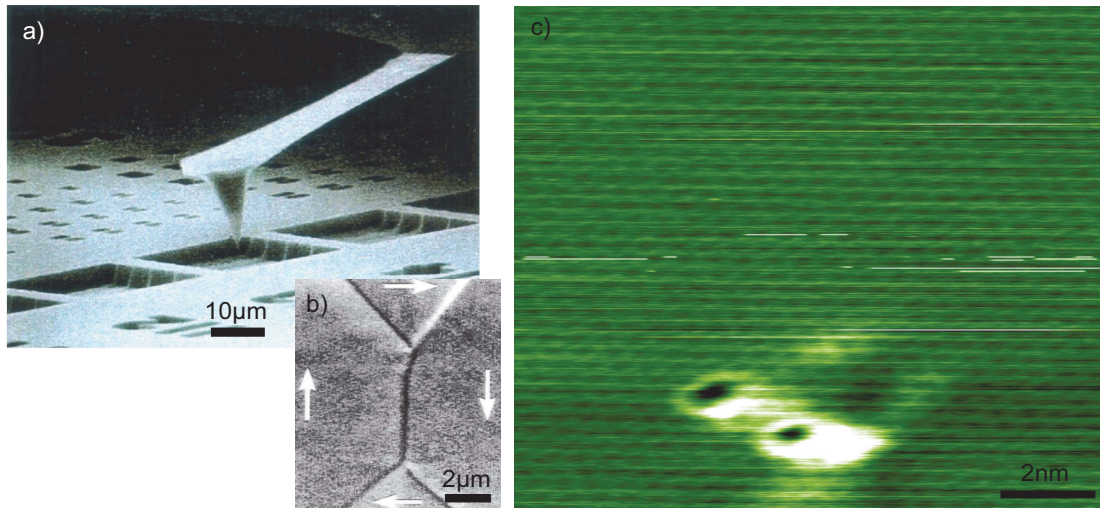


Abbildung 5.1.: Das AFM nutzt als Sonde eine federnd gehaltene Spitze, den sogenannten Cantilever, dessen Auslenkung durch Krafteinflüsse bei Annäherung an die Probenoberfläche gemessen werden können. a) zeigt eine Elektronen-Mikroskop Aufnahme eines solchen Cantilevers (Aufnahme: Wolter u. a. (1991)). Es können dabei verschiedene Kräfte gemessen und so unterschiedliche Aufnahmen erzeugt werden. Messungen mit magnetischer Spitze (b)) erlauben etwa Landau-Lifshitz Domänen sichtbar zu machen (Aufnahme: Schneider (1995)). Nutzt man die polare Wechselwirkung der Spitze mit dem ionischen Kristall, lassen sich mit CaF_2 atomare Auflösungen erreichen und so einzelne Defekte im Gitter beobachten (Aufnahme: M.Nimmrich, physikalische Chemie, Universität Mainz).

an eine Probenoberfläche wirken, lenkt diese messbar aus. Je nach Probe, Spitze und Messmethode dominieren dabei verschiedene Kräfte, etwa van-der-Waals, elektrostatische oder magnetische Wechselwirkungen. So lässt sich die AFM selbst noch einmal in verschiedene Unterkategorien unterteilen, welchen jeweils ein bestimmter Wechselwirkungsmechanismus zugrunde liegt um so entsprechende Aufnahmen von Probeneigenschaften zu erstellen. Ein Beispiel hierfür zeigt Abb. 5.1 b), in welcher eine magnetische Sonde Landau-Lifshitz Domänen auf der Probenoberfläche sichtbar macht (dies nennt sich dementsprechend Magnetic Force Microscopy, MFM). Für die Messung der

Cantilever-Auslenkung bieten sich verschiedene Verfahren an, wie etwa der Fokussierung eines Lasers auf die Rückseite des Cantilevers und Messung dessen Ablenkung. Für das Verständnis der folgenden Ergebnisse ist die Kenntnis der genauen technischen Umsetzung dabei nicht notwendig. Tatsächlich ist diese mit zahlreichen, im Fachbereich breit diskutierten Details verbunden, weshalb ich auf entsprechende Literatur verweisen möchte: Verständliche Überblicke über das Feld der SPM bieten etwa (Waser (2005) und Nikiforov u. Bonnell (2007)). Unter anderem ein ausführliches Kapitel über AFM an CaF_2 , wie es für unsere Messungen der Fall ist, führen Giessibl u. a. (2010) aus. Ein solcher Kristall lässt sich durch Spaltung entlang der (111)-Ebene in atomar flache und zugleich UHV stabile Schichten präparieren. Durch das Ausnutzen der polaren Wechselwirkung der Spitze mit dem ionischen Kristall können so Aufnahmen der Oberfläche bei atomarer Auflösung erzielt werden, wie 5.1 c) es zeigt (Giessibl u. a., 2010). Diese Aufnahme wurde mit dem UHV AFM aufgenommen¹, an welchem auch die späteren, im Folgenden vorgestellten Messungen durchgeführt werden sollen.

5.2. Prinzip und Messungen

Auf dem Weg einzelne implantierte Ionen mittels AFM nachzuweisen gibt es zwei Hürden zu überwinden: Zum einen muss eine Möglichkeit gefunden werden die Stelle der Implantation derart zu markieren, dass sie mit Hilfe des AFMs wiedergefunden werden kann. Eine AFM Aufnahme, die in der Lage ist einzelne Defekte aufzulösen, ist auf ein Sichtfeld einiger zehn Nanometer Kantenlänge beschränkt. Es muss also möglich sein, mit der Spitze die Stelle bei einer Präzision dieser Größenordnung anzufahren, um die Implantationsstelle vermessen zu können. Die zweite Hürde ist der Transport der Probe vom Implantations- zum Messplatz. In unserem Fall ist dies technisch nicht unter Aufrechterhaltung eines UHVs lösbar. Somit wird die Probenoberfläche unweigerlich einem Hintergrundgas ausgesetzt und somit durch Absorption kontaminiert (Rei (1999), Reichling u. Barth (1999)). Auf einer auf dieser Weise verunreinigten Fläche ist jedoch, wie Abb. 5.2 zeigt, das Identifizieren der erzeugten Defekte nicht durchführbar.

¹Durch unsere Kollaborationspartner der AG Kühnle, insbesondere M. Nimmrich, physikalische Chemie, Uni Mainz

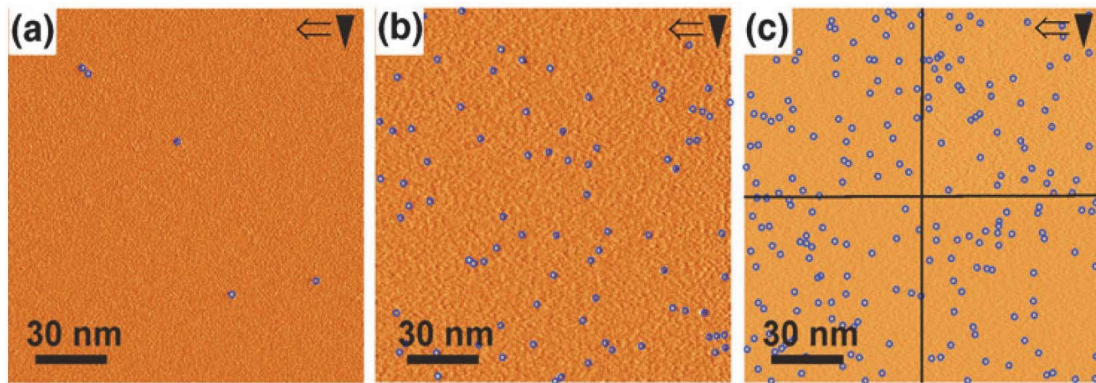


Abbildung 5.2.: Gezeigt ist eine AFM Aufnahme der Oberfläche eines CaF_2 Kristalls direkt nach dem Cleaven (a), drei (b) und fünf (c) Tage danach. Die Probe wurde während der gesamten Zeit in einem UHV bei $1.8 \cdot 10^{-10}$ mbar gelagert. Zu sehen ist (zur Verdeutlichung umkreist) die Absorption von Molekülen aus dem Hintergrundgas. Die schwarzen Striche in (c) markieren die vier Einzelaufnahmen, aus denen die Bilder zusammengesetzt sind (Aufnahme: Hirth u. a. (2006)).

Eine Lösung hierfür ist das Aufbringen einer Schutzschicht unmittelbar nach dem Cleaven². Teil (a) der Abb. 5.2 zeigt, dass die Oberfläche zu diesem Zeitpunkt beinahe frei von Defekten ist. In unserem Fall wird eine C_{60} -Schicht auf diese Oberfläche aufgebracht, welche sie fortan gegen Kontamination schützt. Zur späteren Untersuchung lässt sich die Probe durch Heizen wieder von der Schicht befreien, und es bleibt die ursprüngliche, praktisch defektfreie Schicht zurück (Loske u. a., 2010). Die Markierung der Implantationsstelle erfolgt dabei über die in Abb. 5.3 a) demonstrierte Methode. Die im UHV präparierte, mit einer C_{60} -Schicht geschützte Probe wurde unter Normalbedingungen in den bereits in Kapitel 4.1 vorgestellten Implantierer eingebaut, welcher auch zur Herstellung der Diamantprobe der vorherigen Kapitel genutzt wurde. Es handelt sich hierbei um einen Ionenstrahl, der bei einer gewünschten (statistisch fluktuierenden) Dosis Ionen einer gewissen Energie auf eine Probe fokussieren kann. Hiermit wurden verschiedene Dosen Argon-Ionen bei mehreren Ionenenergien in die Probe implantiert. Auf diese Weise entstehen runde Bereiche nahezu homogener Argon-Dichte mit einem Durchmesser von etwa $25 \mu\text{m}$. Bei ausreichend hoher Dosis lassen sich die so erzeugten Stellen durch ein einfaches Auflichtmikroskop betrachten. An Ar^{2+} Ionen bei einer

²Cleaven wird der Prozess der Probenherstellung durch Spaltung genannt. In diesem Fall wird ein CaF_2 Kristall im UHV angeritzt und zerbricht in zwei Hälften. Die so entstehende Grenzfläche ist eine hochreine, atomar-flache Ebene.

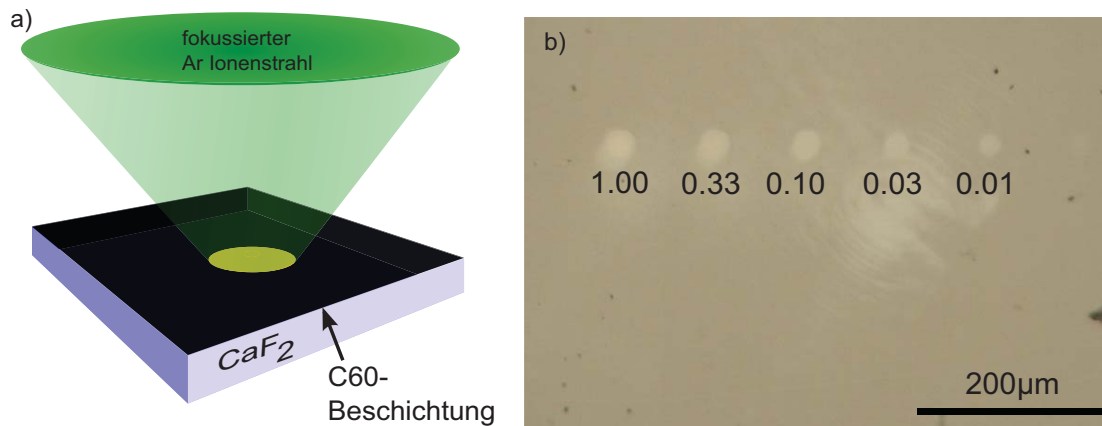


Abbildung 5.3.: Um wiederfindbare Stellen auf der Probe zu erzeugen, können Markierungen mit Hilfe des in Kapitel 4.1 beschriebenen Implantierers erzeugt werden (a)). Um die Probe gegen Kontamination zu schützen wird sie Unmittelbar nach ihrer Präparation in einem UHV mit einer C_{60} Schicht versehen. Die Implantation erfolgt dabei durch die Schicht hindurch und hinterlässt bei ausreichender Dosis unter einem einfachen Auflichtmikroskop sichtbare Stellen (b)). Die jeweiligen Dosen sind hier in der Einheit implantierter Argon Ionen pro nm^2 angegeben.

Einschussenergie von 10 keV aufgenommene Stellen zeigt Teil b) aus Abb. 5.3, wobei die Dosis (angegeben in der Einheit Ionen pro nm^2) jeweils unter der Einschussstelle angegeben ist. Eine (Luft-) AFM Aufnahme derjenigen Stelle mit höchster Energie zeigt Abb. 5.4. In Teil a) wurde die Oberfläche des Kristalls samt C_{60} betrachtet, Teil b) ist eine analoge Aufnahme nach dem Abheizen der Schicht. In beiden Fällen lässt sich die Implantationsstelle deutlich erkennen, woraus ersichtlich ist, dass die Implantation hierbei durch die (lediglich einige Lagen dicke) C_{60} -Schicht hindurch bis in die Probe selbst erfolgt. Zwar schützt die Schicht die Probe gegen Oberflächenkontamination, verhindert aber offensichtlich nicht die Implantation. Da die Stellen bereits bei Auflösungen ab etwa einem Mikrometer sichtbar sind, können Bildbereiche von mehreren zehn oder hundert Mikrometern aufgenommen und die Implantationsstelle so rasch gefunden werden. Um nun einzelne implantierte Ionen nachzuweisen kann die in Kapitel 4.1 beschriebene Methode angewendet werden, bei der die Implantation durch eine angebohrte AFM Spitze erfolgt. Wie Teil a) der Abb. 5.5 zeigt, kann ein Muster in den Schatten des Cantilevers implantiert werden. Im Experiment wurde hierzu ein Feld bestehend aus 5×5 Punkten in bekanntem Abstand zur Schattengeometrie implantiert (Teil b) der Abb. 5.5), bei denen die mittlere Anzahl implantierter Ionen pro Punkt bei eins liegt. Auf diese Weise

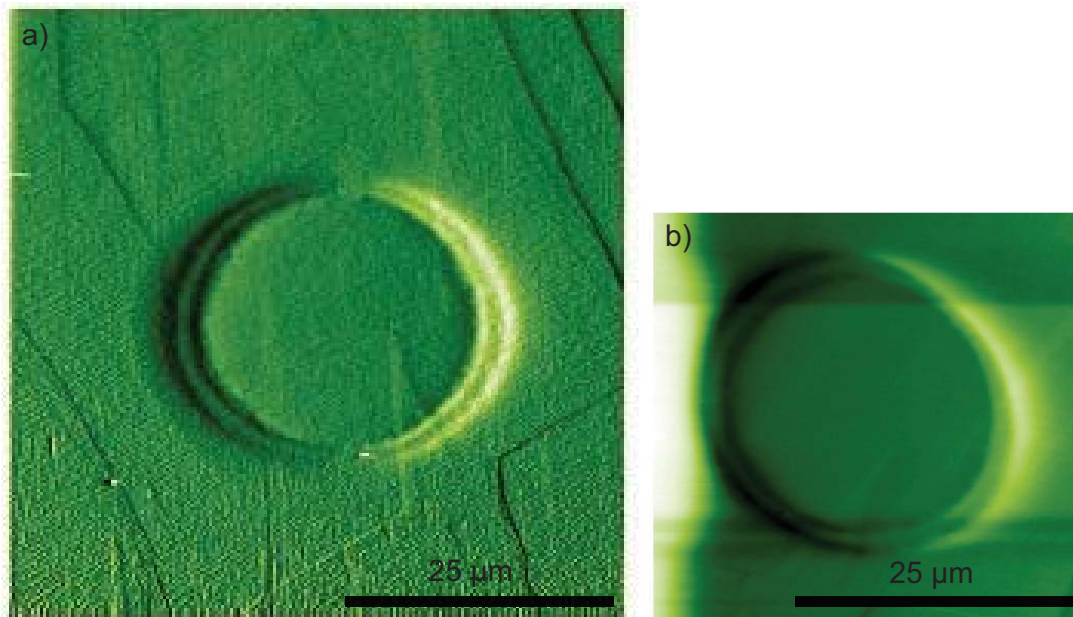


Abbildung 5.4.: Die implantierten Stellen sind sowohl vor (a)) als auch nach (b)) Abheizen der C_{60} Schicht zu erkennen. Dies zeigt, dass diese trotz ihrer vor Kontamination schützenden Eigenschaft eine Implantation in die eigentliche Probe nicht verhindert. Aufgrund ihrer Größe sind die Stellen bereits bei einer Auflösung ab etwa einem Mikrometer deutlich sichtbar, weshalb Aufnahmen bei entsprechend weitem Sichtfeld durchgeführt und die Implantationsstellen so wiedergefunden werden können.

lässt sich nun eine Probe nach Abheizen der Schutzschicht mit einer AFM Aufnahme bei geringer Auflösung zum raschen Finden der Implantationsstelle absuchen. Ist diese gefunden, kann ausgehend von der Geometrie das Muster im Schatten angesteuert und (bei einem Sichtfeld einiger zehn Nanometer) bei atomarer Auflösung aufgenommen werden, um die einzelnen Musterpunkte zu finden. Diese Messungen sind derzeit im Gange.

Als nächster Schritt wird sodann diese Technik mit der deterministischen Implantation über die hier vorgestellte Ionenfalle erfolgen. Zunächst wird wieder eine Probe im UHV präpariert, dort mit einer C_{60} Schicht versehen und mittels des AFM Implantierers anschließend ein Schatten innerhalb eines Kreises von $25\mu\text{m}$ Durchmesser erzeugt (Teil c) der Abb. 5.5). Im nächsten Schritt wird diese Probe dann in die in Kapitel 3 be-

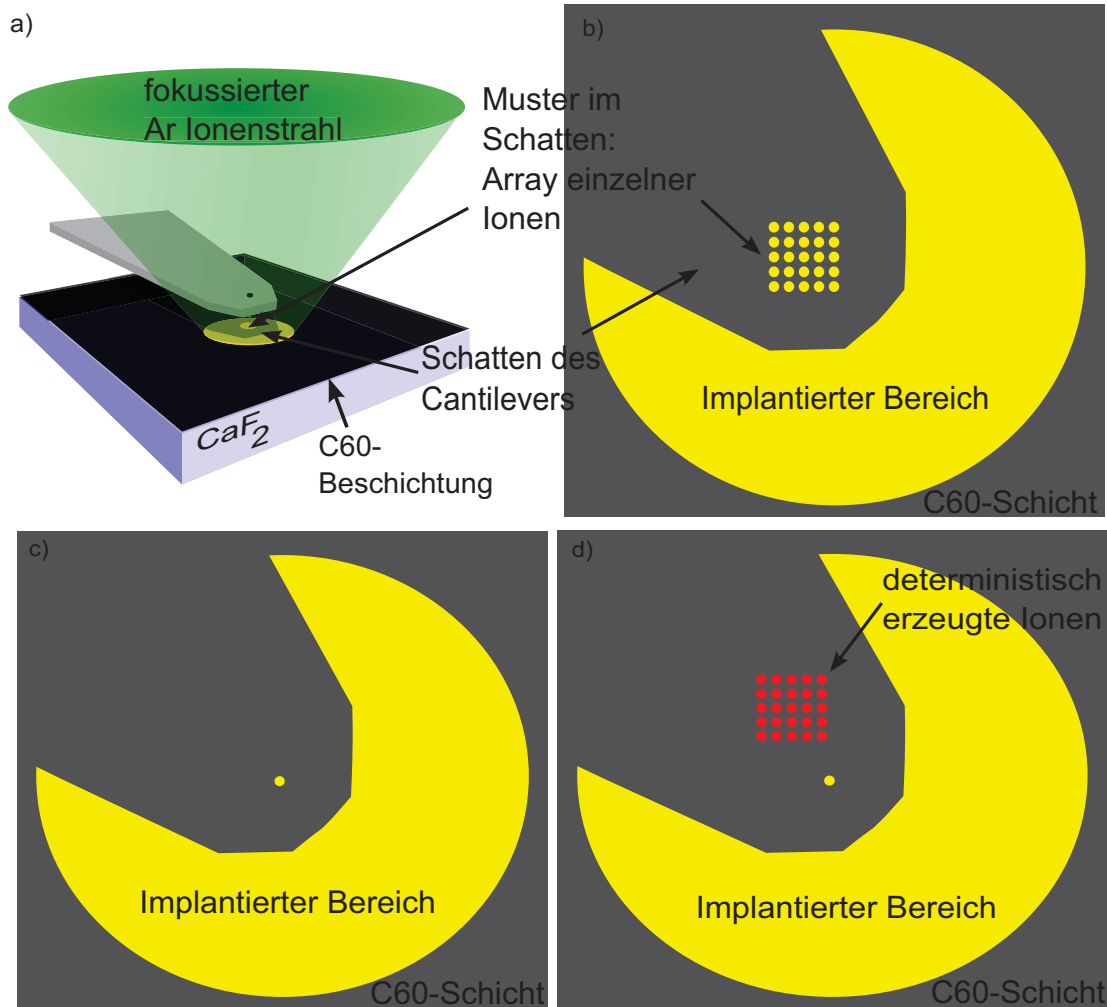


Abbildung 5.5.: In den bei der Implantation durch einen AFM Cantilever (a)) entstehenden Schatten kann ein Muster (b)) in definiertem Abstand zur bekannten Schattengeometrie implantiert werden. Der Schatten lässt sich bei der Aufnahme mittels eines AFMs rasch finden. Von dort kann die Messspitze dann zum Muster geführt werden, um Aufnahmen mit atomarer Auflösung durchzuführen und einzelne Defekte so zu registrieren. Um mit Hilfe der Ionenfalle ein Muster deterministisch erzeugter Einzelionen zu implantieren, kann zunächst ein Schatten innerhalb eines Kreises mit 25 µm Durchmesser erzeugt werden (c)). Dieser lässt sich in der in Kapitel 3 vorgestellten Detektions- und Implantationskammer wiederfinden, bevor mit Hilfe der Paulfalle einzelne Ionen in den Schatten implantiert werden können. Diese lassen sich anschließend auf gleiche Weise im AFM finden und einzeln untersuchen.

schriebene Detektorkammer des Fallenimplantationsplatzes eingebaut. Mithilfe des in die Kammer integrierten Mikroskops lässt sich der Schatten finden und durch die Paul-falle ein deterministisches Muster in dazu fest definiertem Abstand implantieren³ (Teil d) der Abb. 5.5). Anschließend kann die Probe ausgebaut und in den AFM Messplatz installiert werden, in welcher die einzelnen, deterministisch implantierten Fehlstellen nach demselben Schema auffindbar sind und untersucht werden können.

³Die Präzision, mit der das Muster positioniert werden kann wird in diesem Fall durch die Auflösung des Mikroskops limitiert. Zwar ist keine Fluoreszenz durch Anregung durch den eingebauten Laser zu erwarten, doch kann dieser zur einfachen rasternden Auflichtmikroskopie verwendet werden. Die Auflösung wäre dann vergleichbar mit dem in Abschnitt 4.5 bestimmten Wert. Die Genauigkeit des Musters selbst lässt sich dann mit der des Verschiebetisches, also auf einer Skala einiger Nanometer kontrollieren. Ein Muster ausreichender Größe kann dann auch bei kleinstem Sichtfeld der AFM Aufnahme rasch gefunden werden.

6

Zusammenfassung und Ausblick

Im Verlauf dieser Arbeit wurde eine unter UHV Bedingungen arbeitende Implantationskammer konstruiert, die mit einer Einzelionenquelle verbunden in der Lage ist Substrate zur deterministischen Implantation einzelner Ionen mit einer Genauigkeit weniger Nanometer zu positionieren. Hierzu können extrahierte Ionen zunächst direkt mit Hilfe eines Elektronenvervielfachers nachgewiesen werden, andererseits ermöglichen in den Aufbau installierbare Ionenoptiken deren Fokussierung auf eine Probe. Ein Piezoverschiebetisch erlaubt es ferner, diese unter ein im UHV arbeitendes Fluoreszenzmikroskop zu verschieben und noch in-situ zu untersuchen. Es gelang auf diese Weise einzelne Farbzentren in einer Diamantprobe nachzuweisen, deren Quanteneigenschaften über Sättigungsmessungen zu beobachten und Intensitätskorrelationsfunktionen $g^{(2)}$ aufzunehmen. Einerseits konnte gezeigt werden, dass die erzielbaren räumlichen Auflösungen bei Aufnahmen unter Atmosphäre sowie im Bereich von 10^{-7} mbar im Rahmen ihrer Fehler übereinstimmen. Eine Verschlechterung der Messergebnisse durch Vakuumbedingungen konnte nicht festgestellt werden. Andererseits liegen die nach dem Rayleigh Kriterium bestimmten Werte für die laterale $((443 \pm 7) \text{ nm})$ sowie für die axiale $((1240 \pm 40) \text{ nm})$ Auflösung des Mikroskops unterhalb der theoretischen Erwartungen von 287 nm bzw. 1045 nm. Dies lässt sich jedoch durch eine nicht optimale Ausrichtung des Strahlengangs erklären und durch eine sorgfältige Nachjustage beheben. Für selbige Annahme spricht ebenfalls die Photonensammeleffizienz, welche experimentell zu $(0.34 \pm 0.01) \%$ bestimmt wurde. Diese liegt zwar im durchschnittlichen Bereich vergleichbarer Mikroskope, eine vorweg Abschätzung jedoch deutet darauf hin, dass sich diese auf etwa ein bis zwei Prozent steigern lässt.

Derzeit wird die Apparatur um einen heizbaren Probenhalter erweitert, mit dessen Hilfe implantierte Stickstoffionen direkt in Farbzentren überführt werden können. In Kombination mit der zweiten derzeitigen Erweiterung des Aufbaus, der STED Mikroskopie, wird dies erlauben implantierte Farbzentren mit einer Auflösung im Bereich von zehn

Nanometern zu untersuchen und so verschiedenste Messungen durchzuführen: Zum einen wird dies ermöglichen Muster bei Strukturabständen einiger Nanometer zu implantieren und direkt mittels STED zu vermessen. Deren Erzeugung ist insbesondere für die Herstellung wechselwirkender Qubits auf NV Basis von entscheidender Bedeutung. Weiter können Stickstoffionen bei verschiedenen Energien implantiert und so Studien zur Erzeugungseffizienz von Farbzentren voran getrieben werden. Interessant ist vor diesem Hintergrund auch die Möglichkeit des mehrmaligen Implantierens einzelner Stickstoff- oder zusätzlicher Ionen und des Vermessens einer etwaigen Steigerung der erreichten Effizienz.

Um ferner eine hiervon unabhängige Nachweismethode einzelner implantierter Ionen zu erreichen, wurde ein Verfahren aufgesetzt, welches es erlauben wird, in einen CaF_2 Kristall implantierte Ionen mittels AFM zu detektieren. In Kooperation mit M. Nimmrich¹ und S. Pezzagna² wurden erste Versuchsreihen begonnen, bei denen die Stellen der Implantation von Ionen derart markiert werden konnten, dass sie über optische Mikroskopie wiederfindbar sind. Dies wird es einerseits ermöglichen über den hier konstruierten Aufbau Einzelionen in fest definiertem Abstand zu dieser Referenz zu implantieren und sie andererseits mit einem AFM gezielt ansteuern zu können. Zum Schutz der Probe gegen Oberflächenkontamination während des Transports konnte dabei erfolgreich C_{60} als Schutzschicht aufgetragen und gezeigt werden, dass diese die Implantation dabei nicht hindert.

Derzeit laufen Messungen, in denen über einen nicht deterministischen Ionenimplantationsaufbau erzeugte Muster markiert wurden und mittels AFM untersucht werden. Im nächsten Schritte wird dies sodann auf Muster ausgedehnt werden, die mittels der hier vorgestellten Einzelionenquelle erzeugt wurden. Während auf diesem Weg zunächst die Genauigkeit der Referenzbestimmung mit Hilfe des optischen Mikroskops bestimmt werden wird, können bei Erfolg dieser Versuchsreihen vielfältige Messungen folgen:

Eine erste Anwendung wird dabei die Bestimmung der Implantationsgenauigkeit sein. Anschließend können so etwa die Effekte der Ionenimplantation auf die Oberfläche des Kristalls untersucht und Parameter wie Anzahl oder Energie eingeschossener Teilchen variiert werden. Ferner ist diese Methode in keinster Weise auf ein spezielles Ion limitiert, zahlreiche verschiedene Spezies und deren Einwirkungen mögen vermessen werden.

¹AG A. Kühnle, physikalische Chemie, Universität Mainz

²AG J. Meijer, RUBION, Ruhr Universität Bochum



Anhang

A.1. Zur Berechnung des theoretischen Auflösungsvermögens

Zur Erläuterung der Berechnung der in Abb. 3.3 dargestellten Intensitätsverläufe ist es notwendig die grundlegenden Abbildungen im Falle der Konfokalmikroskopie am Farbzentrum zu betrachten. Ohne den allgemeinen Fall zu erläutern, möchte ich hier beschreiben, wie sich für die beiden gezeigten Spezialfälle der Betrachtung der Intensitätsverteilung entlang der optischen Achse bzw. innerhalb der Fokalebene das theoretisch erwartete Auflösungsvermögen bestimmen lässt.

In Kapitel 3.1.2 wird die Point-Spread-Function, PSF, als die mathematische Funktion eingeführt, welche die Abbildung eines punktförmigen Objektes durch ein Objektiv beschreibt. In umgekehrter Weise beschreibt sie ebenso die Intensitätsverteilung an einem Ort (ζ, ρ) hinter einem beleuchteten Objektiv. (ζ, ρ) sind dabei speziell normierte zylindrische Koordinaten entlang der optischen Achse mit dem Radialanteil $\zeta = 2\pi NA^2 \cdot r/\lambda$ und einem Abstand $\rho = 2\pi NA \cdot r/\lambda$ von der Fokalebene, welche üblicherweise in der Mikroskopie verwendet werden. Die grundlegende Geometrie ist in Abb. A.1 gezeigt. In einem ersten Schritt wird ein Anregungslasers auf die Probe fokussiert. Fluoreszenzlicht kann sodann nur im ausgeleuchteten Probenvolumen entstehen, weshalb es notwendig ist die durch die Beleuchtung resultierende Intensitätsverteilung in der Probe zu betrachten. Die genaue Berechnung der dreidimensionalen PSF ist äußerst aufwendig, zahlreiche Veröffentlichungen existieren, die sich mit dieser und ähnlichen Fragen beschäftigen (etwa Zhang u. a. (2007)). Eine die Thematik stark vereinfachende Annahme

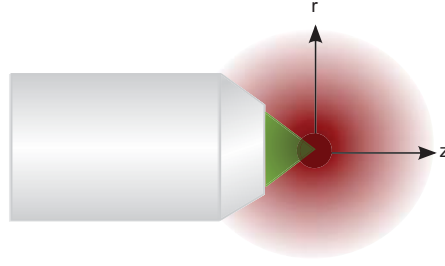


Abbildung A.1.: Zur Verdeutlichung des in der Rechnung genutzten Koordinatensystems sind die optische Achse (z) des Objektives und die dazu orthogonale Fokalebene (Radialrichtung r) dargestellt. Für die Berechnung der Auflösungsvermögen im Falle der Farbzentren ist es wichtig zu beachten, dass mit grünem Licht angeregt und ein rotverschobenes Lichtspektrum emittiert wird.

ist die Nutzung der paraxialen Näherung¹. Wird ein sphärisches (aberrationsfreies) Objektiv über seinen Rand hin ausgeleuchtet kann das Licht des Anregungslasers in Form ebener Wellen genähert werden und die Intensitätsverteilung innerhalb der Fokalebene des Objektives folgt einem Verlauf, welcher der Fouriertransformierten (FT) der Objektivblendenfunktion entspricht. Diese ist von der Form

$$PSF_{532nm}(\rho, \zeta = 0) = \left(\frac{2J_1(\rho)}{\rho} \right)^2. \quad (\text{A-1})$$

ρ und ζ sind für $\lambda = 532nm$ zu berechnen². Für weniger breit ausgeleuchtete Objektive ist die FT der Faltung des Laserfeldes mit der Blendenfunktion einzusetzen. Da in unserem Falle genügend Laserleistung zur Verfügung steht ist das Anregungslicht bewusst aufgeweitet und leuchtet das Objektiv deutlich über seinen Rand aus. Die Betrachtung genannter Faltung ist hier somit nicht nötig, was ein maximal mögliches Auflösungsvermögens erlaubt. Aus dem so beleuchteten Probenvolumen wird nun Licht emittiert, welches seinerseits erneut durch dasselbe Objektiv eingesammelt wird. Die Wellenlänge entspricht nun der des emittierten Lichtes. Im Falle des Farbzentruns ist dieses kein diskreter Wert, sondern folgt einer spektralen Verteilung. Die größte Wellenlänge dieses Bereiches limitiert dabei das erreichbare Auflösungsvermögen. Sie wird hier daher als $800nm$, in etwa der größten zum Spektrum beitragenden Wellenlänge, eingesetzt.

¹Die paraxiale Näherung trifft im vorliegenden Fall einer hohen NA streng genommen nicht zu. Es zeigt sich aber (Webb, 1996), dass die Abweichungen kaum ins Gewicht fallen. Die wesentlichen Unterschiede sind dabei, dass die Minima nicht komplett auf Null zurück gehen und die Breite der PSF entlang ρ leicht ansteigt.

² $J_1(\rho)$ ist dabei die Bessel Funktion erster Gattung und Ordnung.

Da die Lochblende - bei richtiger Justage und Größe - Licht aus anderen Ebenen heraus filtert, entspricht die resultierende Abbildung eines in der Fokalebene befindlichen Farbzentrum ($\zeta = 0$) somit dem Produkt beider Abbildungsfunktionen,

$$PSF^{konfokal,NV}(\rho, \zeta = 0) = PSF_{532nm}(\rho, \zeta = 0) \cdot PSF_{800nm}(\rho, \zeta = 0). \quad (A-2)$$

Auf dieser Basis sind die in Abb. 3.3 dargestellten Verläufe berechnet.

Befindet sich das Farbzentrum zentriert vor dem Objektiv ($\rho = 0$), aber nicht in der Fokalebene, lässt sich mit

$$PSF(\rho = 0, \zeta) = \left(\frac{\sin(\frac{\zeta}{4})}{\frac{\zeta}{4}} \right)^2 \quad (A-3)$$

ein ähnlicher Verlauf angeben, dessen Produkt bei den Wellenlängen $\lambda = 532nm$ und $\lambda = 800nm$ wieder den konfokalen Fall beschreibt und Grundlage für die Berechnung des axialen Verhaltens der in Abb. 3.3 dargestellten Verläufe ist.

Im Falle der Weitfeldmikroskopie ist die Abbildung in der Fokalebene durch die einfache PSF des fluoreszierenden NV Zentrums

$$PSF_{800nm}(\rho, \zeta = 0) \quad (A-4)$$

und entlang der optischen Achse durch die entsprechende Form

$$PSF_{800nm}(\rho = 0, \zeta) \quad (A-5)$$

gegeben. Auf dieser Basis wurden die übrigen beiden Kurven der Abbildung berechnet.

A.2. Zur Gaußfunktion als Fitkurve

Wie im vorangegangenen Abschnitt A.1 gezeigt, sind die theoretisch korrekten Beschreibungen der in Kapitel 3 gemessenen Intensitätsverläufe einer Aufnahme jeweils von der Form aus Gl. A-2, wobei ρ wie oben definiert der Abstand zur optischen Achse des Objektives ist. Der sich so ergebende Verlauf ist durch die rote Kurve in Abb. A.2 a) gezeigt. Der entsprechende Fall für den sich mittels Gl. A-3 ergebenden axialen Ver-

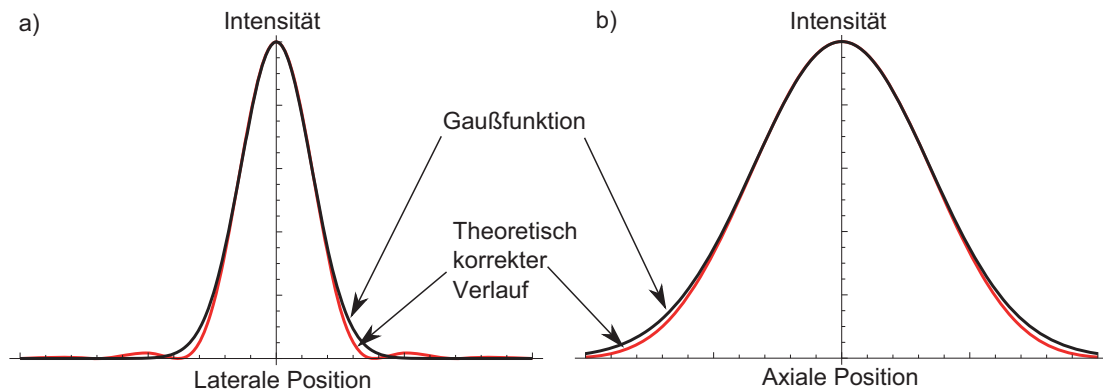


Abbildung A.2.: Im Rahmen der Arbeit wurden die Breiten gemessener Intensitätsverteilungen über Gaußfunktionen genähert. Diese Breiten weichen von den im Rahmen der paraxialen Näherung gültigen theoretischen Vorhersagen nur um einige Prozent ab. Im Rahmen der Messungen reicht dies zur Breitenbestimmung vollkommen aus.

lauf ist durch die rote Kurve in Teil b) dargestellt. Zur theoretischen Beschreibung des erwarteten Auflösungsvermögens ist dieser Verlauf geeignet. Die praktische Anpassung dieser Funktion an die Messwerte jedoch ist mathematisch aufwendig und wenig sinnvoll. Einerseits resultiert sie selbst aus einer Approximation - der paraxialen Näherung - und ist somit nicht analytisch korrekt. Dejustage und Aberration sowie die Intensitätsverteilung des Anregungslichtes führen zudem zu einer zusätzliche Abweichung von dieser Form. Es reicht aus den Verlauf der Messwerte über einen passenden Zusammenhang anzunähern. Hierzu sind in den beiden Darstellungen der Abb. A.2 Gaußfunktionen (schwarz) zusätzlich eingezeichnet. Es ist dort leicht ersichtlich, dass mit Ausnahme der außen liegenden Flanken die Verläufe sehr gut übereinstimmen. Es existieren verschiedene Ansätze zu Approximation des funktionalen Verlaufs durch die Gaußfunktion (etwa Zhang u. a. (2007)). Im Ergebnis führen diese zu maximal um einige Prozent abweichenden Breiten. Im Rahmen des Experimentes eignen sich Gaußfunktionen somit ebenso gut zur Berechnung des Auflösungsvermögens anhand der Breiten der Intensitätsverteilungen.

A.3. Die Parameter der Fits

Die in Kapitel 4.3 den Werten aus Abb. 4.9 und 4.10 angepassten Verläufe entsprechen dem funktionalen Zusammenhang, wie er dort in Gl. 4.12 beschrieben ist. Um einen etwaigen Fehler in der Normierungshöhe zu berücksichtigen wurde zudem die Höhe der geraden Flanken als weiterer freier Parameter angepasst. Die sich so ergebende Funktion hat also die Form

$$g_{NV-}^{(2)}(\tau) = M \cdot \left(\frac{1}{n} \cdot (1 + ae^{-\frac{\tau}{\tau_2}} - (1+a)e^{-\frac{\tau}{\tau_3}}) + \frac{n-1}{n} \right) \quad (\text{A-6})$$

, wobei die Höhe M , der Koeffizient a und die Anzahl beteiligter Farbzentren n dimensionslose Zahlen sind. Die Eingangsleistung P wurde für die Messungen unmittelbar vor dem Objektiv bestimmt. Die sich so ergebenden Parameter und ihre Standardfehler aus dem Fit zeigt Tab. A.1.

Tabelle A.1.: Fitparameter der den Abb. 4.9 und 4.10 zugrundeliegenden Verläufe gemäß Gl. A-6.

P [μW]	M [dim.los]	a [dim.los]	τ_0 [10 ⁻⁸ ns]	τ_2 [10 ⁻⁸ ns]	τ_3 [10 ⁻⁷ ns]	n [dim.los]
300	0.98 ± 0.01	-1.51 ± 0.12	7.50 ± 0.10	1.00 ± 0.28	1.37 ± 0.34	1.2 ± 0.1
450	0.95 ± 0.04	-1.64 ± 0.16	7.62 ± 0.14	0.73 ± 0.25	2.30 ± 0.78	1.4 ± 0.3
710	0.97 ± 0.02	-2.12 ± 0.21	7.56 ± 0.09	0.11 ± 0.03	1.50 ± 0.25	1.8 ± 0.3
1400	0.98 ± 0.01	-2.20 ± 0.20	7.49 ± 0.07	0.78 ± 0.01	1.12 ± 0.13	1.1 ± 0.1

A.4. Zur Steuerungs-Software

Zur Steuerung aller Experimente existiert ein eigens dafür in unserer Gruppe entwickeltes Programm. Dessen verarbeitende Programmschicht basiert auf C++, wobei einzelne Ergänzungen scriptartig eingefügt werden können. So ist es möglich neue Programm-routinen zu entwickeln sowie Bibliotheken, etwa für Hardware-Ergänzungen, einzubinden. Im Falle der Steuerungssoftware des Mikroskops wurden auf dieser Basis Routinen geschrieben, in welche Bibliotheken des Piezoverschiebetisches sowie der Zählkarte eingebunden wurden. Die einzelnen Funktionen lassen sich auf einer graphischen Benutzeroberfläche darstellen (s. Abb. A.3). Kernstück ist dabei die zweidimensionale Darstellung der gemessenen Zählraten in Abhängigkeit der Piezoposition. Es lassen sich darin

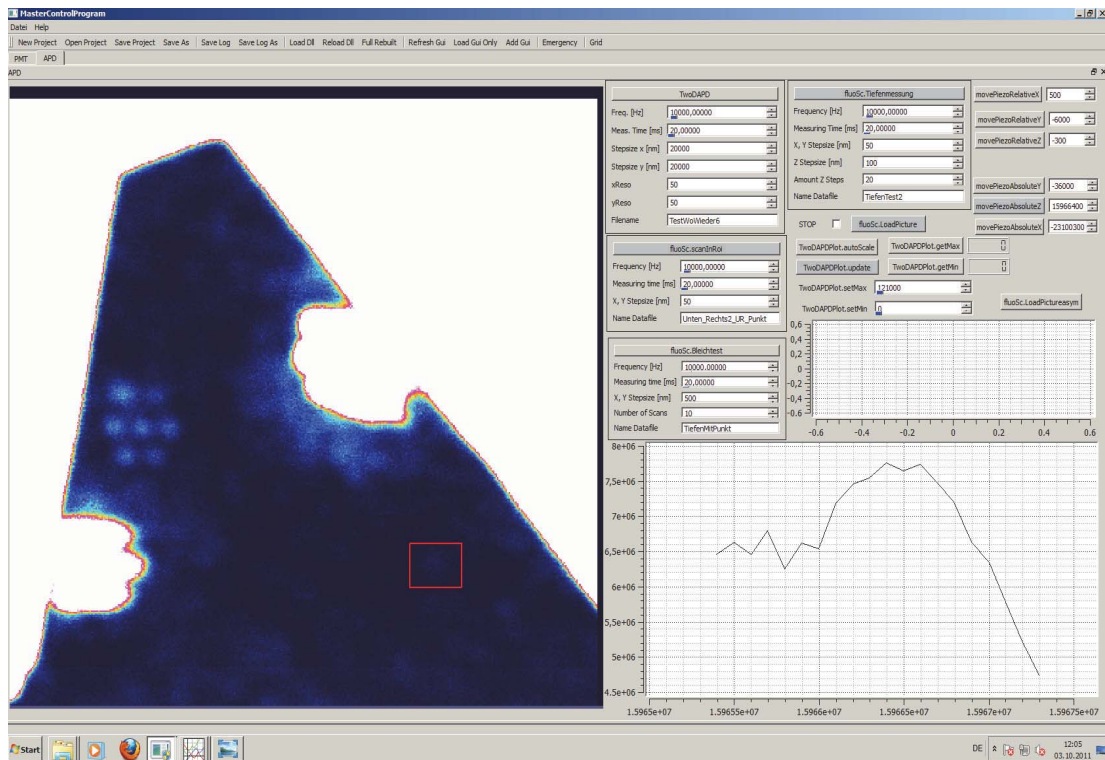


Abbildung A.3.: Die Steuerungs-Software basiert auf einer modular aufgebauten graphischen Oberfläche, in welcher verschiedene Funktionen aufrufbar sind. Hierzu können Zählraten mit der aktuellen Position des Verschiebetisches verknüpft und graphisch dargestellt werden. Es können neue Stellen angefahren oder innerhalb des aktuellen Bildes liegende Positionen ausgewählt und vermessen werden.

Punkte und Gebiete von Interesse auswählen sowie außerhalb des dargestellten Bereichs liegende Positionen anfahren und die jeweiligen Zählraten messen und in verschiedenen Weisen graphisch auftragen. Positionen und zugehörige Aufnahmen können gespeichert und geladen werden, wobei sich der Verschiebetisch automatisch an die entsprechende Stellen bewegt.



Literaturverzeichnis

[Rei 1999]

Degradation of the $\text{CaF}_2(111)$ surface by air exposure. In: *Surface Science* 439 (1999), Nr. 1-3, 181 - 190. [http://dx.doi.org/10.1016/S0039-6028\(99\)00760-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0039-6028(99)00760-8). – DOI 10.1016/S0039-6028(99)00760-8. – ISSN 0039-6028

[Aharonovich u. a. 2011]

AHARONOVICH, I. ; GREENTREE, A. D. ; PRAWER, S.: Diamond photonics. In: *Nature* 5 (2011), Nr. 7, 397-405. <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2011.54>. – DOI 10.1038/nphoton.2011.54

[Balasubramanian u. a. 2009]

BALASUBRAMANIAN, G. ; NEUMANN, P. ; TWITCHEN, D. ; MARKHAM, M. ; KOLESOV, R. ; MIZUOCHI, N. ; ISOYA, J. ; ACHARD, J. ; BECK, J. ; TISSLER, J. ; JACQUES, V. ; HEMMER, P. R. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J.: Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. In: *Nature Materials* 8 (2009), 383–387. <http://dx.doi.org/10.1038/nmat2420>

[Brouri u. a. 2000]

BROURI, Rosa ; BEVERATOS, Alexios ; POIZAT, Jean-Philippe ; GRANGIER, Philippe: Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), Sep, Nr. 17, 1294–1296. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.25.001294>. – DOI 10.1364/OL.25.001294

[Cirac u. Zoller 1995]

CIRAC, J. I. ; ZOLLER, P.: Quantum Computations with Cold Trapped Ions. In: *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), May, 4091–4094. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.4091>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.74.4091

[Clarke u. Wilhelm 2008]

CLARKE, John ; WILHELM, Frank K.: Superconducting quantum bits. In: *Nature* 453 (2008), 1031-1042. <http://dx.doi.org/10.1038/nature07128>. – ISSN 0028–0836

[Deutsch u. Jozsa]

DEUTSCH, David ; JOZSA, Richard:

[Divincenzo 2000]

DIVINCENZO, D. P.: The Physical Implementation of Quantum Computation. In: *Fortschritte der Physik* 48 (2000), S. 771–783

[Dutt u. a. 2007]

DUTT, M. V. G. ; CHILDRESS, L. ; JIANG, L. ; TOGAN, E. ; MAZE, J. ; JELEZKO, F. ; ZIBROV, A. S. ; HEMMER, P. R. ; LUKIN, M. D.: Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond. In: *Science* 316 (2007), Nr. 5829, 1312-1316. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1139831>. – DOI 10.1126/science.1139831

[Feynman 1982]

FEYNMAN, Richard: Simulating physics with computers. In: *International Journal of Theoretical Physics* 21 (1982), 467-488. <http://dx.doi.org/10.1007/BF02650179>. – 10.1007/BF02650179. – ISSN 0020–7748

[Fickler 2009]

FICKLER, R.: *Kalte einzelne Ionen für die Implantation in Festkörper mit nm Auflösung*, Universität Ulm, Diplomarbeit, 2009

[Fickler u. a. 2009]

FICKLER, Robert ; SCHNITZLER, Wolfgang ; LINKE, Norbert M. ; SCHMIDT-KALER, Ferdinand ; SINGER, Kilian: Optimised focusing ion optics for an ultracold deterministic single ion source targeting nm resolution. In: *Journal of Modern Optics* 56 (2009), Nr. 18-19, 2061-2075. <http://dx.doi.org/10.1080/09500340903180509>. – DOI 10.1080/09500340903180509

[Giessibl u. a. 2010]

GIESSIBL, Franz J. ; SUGAWARA, Yasuhiro ; MORITA, Seizo ; HOSOI, Hirotaka ; SUEOKA, Kazuhisa ; MUKASA, Koichi ; SASAHARA, Akira ; ONISHI, Hiroshi: Noncontact Atomic Force Microscopy and Related Topics. Version: 2010. http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-02525-9_23. In: BHUSHAN, Bharat (Hrsg.): *Springer Handbook*

of Nanotechnology. Springer Berlin Heidelberg, 635-662. – Online-Ressource. – ISBN 978-3-642-02525-9

[Gruber u. a. 1997a]

GRUBER, A. ; DRAEBENSTEDT, A. ; TIETZ, C. ; FLEURY, L. ; WRACHTRUP, J. ; BORCZYKOWSKI, C.: Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers. In: *Science* 276 (1997), Nr. 5321, S. 2012–2014

[Gruber u. a. 1997b]

GRUBER, A. ; DRÄBENSTEDT, A. ; TIETZ, C. ; FLEURY, L. ; BORCZYKOWSKI, C. v. ; WRACHTRUP, J.: Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers. In: *Science* 276 (1997), Nr. 5321, 2012-2014. <http://dx.doi.org/10.1126/science.276.5321.2012>. – DOI 10.1126/science.276.5321.2012

[Han u. a. 2010]

HAN, Kyu Y. ; KIM, Seong K. ; EGGELING, Christian ; HELL, Stefan W.: Metastable Dark States Enable Ground State Depletion Microscopy of Nitrogen Vacancy Centers in Diamond with Diffraction-Unlimited Resolution. In: *Nano Letters* 10 (2010), Nr. 8, 3199-3203. <http://dx.doi.org/10.1021/nl102156m>. – DOI 10.1021/nl102156m

[Hanbury Brown u. a. 1957]

HANBURY BROWN, R. ; LITTLE, A. G. ; TWISS, R. Q.: Correlation Between Photons, in Coherent Beams of Light, Detected by a Coincidence Counting Technique. In: *Nature* 180 (1957), 324–326. <http://dx.doi.org/10.1038/180324a0>. – DOI 10.1038/180324a0

[Hauf u. a. 2011]

HAUF, M. V. ; GROTZ, B. ; NAYDENOV, B. ; DANKERL, M. ; PEZZAGNA, S. ; MEIJER, J. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J. ; STUTZMANN, M. ; REINHARD, F. ; GARRIDO, J. A.: Chemical control of the charge state of nitrogen-vacancy centers in diamond. In: *Phys. Rev. B* 83 (2011), Feb, 081304. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.081304>. – DOI 10.1103/PhysRevB.83.081304

[Hinterberger 2008]

HINTERBERGER, F.: *Physik der Teilchenbeschleuniger und Ionenoptik*. Berlin : Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2008

[Hirth u. a. 2006]

HIRTH, S. ; OSTENDORF, F. ; REICHLING, M.: Lateral manipulation of atomic size

- defects on the CaF₂ (111) surface. In: *Nanotechnology* 17 (2006), Nr. 7, S148. <http://stacks.iop.org/0957-4484/17/i=7/a=S08>
- [Jacob 2010]
JACOB, G.: *Fokussierung einzelner kalter Ionen zur nm genauen Dotierung von Festkörpern*, Universität Ulm, Diplomarbeit, 2010
- [Kane 1998]
KANE, B. E.: A silicon-based nuclear spin quantum computer. In: *Nature* 393 (1998), S. 133–137
- [Kehlberger 2011]
KEHLBERGER, A.: *Entwicklung und Aufbau einer neuartigen Ionenfalle*, Universität Mainz, Diplomarbeit, 2011
- [Koehl u. a. 2011]
KOEHL, W. F. ; BUCKLEY, B. B. ; HEREMANS, F. J. ; CALUSINE, G. ; AWSCHALOM, D. D.: Room temperature coherent control of defect spin qubits in silicon carbide. In: *Nature* 479 (2011), Nr. 7371, 84-87. <http://dx.doi.org/10.1038/nature10562>. – DOI 10.1038/nature10562
- [Kurtsiefer u. a. 2000]
KURTSIEFER, Christian ; MAYER, Sonja ; ZARDA, Patrick ; WEINFURTER, Harald: Stable Solid-State Source of Single Photons. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), Jul, 290–293. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.290>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.85.290
- [Lancaster u. a. 2003]
LANCASTER, G.P.T. ; HÄFFNER, H. ; WILSON, M.A. ; BECHER, C. ; ESCHNER, J. ; SCHMIDT-KALER, F. ; BLATT, R.: Doppler cooling a single Ca⁺ ion with a violet extended-cavity diode laser. In: *Applied Physics B: Lasers and Optics* 76 (2003), 805-808. <http://dx.doi.org/10.1007/s00340-003-1223-6>. – 10.1007/s00340-003-1223-6. – ISSN 0946-2171
- [Loske u. a. 2010]
LOSKE, Felix ; LÜBBE, Jannis ; SCHÜTTE, Jens ; REICHLING, Michael ; KÜHNLE, Angelika: Quantitative description of C₆₀ diffusion on an insulating surface. In: *Phys. Rev. B* 82 (2010), Oct, 155428. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.82.155428>. – DOI 10.1103/PhysRevB.82.155428

[Loss u. DiVincenzo 1998]

LOSS, Daniel ; DiVINCENZO, David P.: Quantum computation with quantum dots. In: *Phys. Rev. A* 57 (1998), Jan, 120–126. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.57.120>. – DOI 10.1103/PhysRevA.57.120

[Martin u. a. 2000]

MARTIN, J.P.D. ; MANSON, N.B. ; DOETSCHMAN, D.C. ; SELLARS, M.J. ; NEUHAUS, R. ; WILSON, E.: Spectral hole burning and Raman heterodyne signals associated with an avoided crossing in the NV centre in diamond. In: *Journal of Luminescence* 86 (2000), Nr. 3-4, 355 - 362. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-2313\(00\)00179-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-2313(00)00179-4). – DOI 10.1016/S0022-2313(00)00179-4. – ISSN 0022-2313

[Meijer u. a. 2008a]

MEIJER, J. ; PEZZAGNA, S. ; VOGEL, T. ; BURCHARD, B. ; BUKOW, H.H. ; RANGELOW, I.W. ; SAROV, Y. ; WIGGERS, H. ; PLÜMEL, I. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J. ; SCHMIDT-KALER, F. ; SCHNITZLER, W. ; SINGER, K.: Towards the implanting of ions and positioning of nanoparticles with nm spatial resolution. In: *Applied Physics A: Materials Science and Processing* 91 (2008), 567-571. <http://dx.doi.org/10.1007/s00339-008-4515-1>. – 10.1007/s00339-008-4515-1. – ISSN 0947-8396

[Meijer u. a. 2008b]

MEIJER, J. ; PEZZAGNA, S. ; VOGEL, T. ; BURCHARD, B. ; BUKOW, H.H. ; RANGELOW, I.W. ; SAROV, Y. ; WIGGERS, H. ; PLÜMEL, I. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J. ; SCHMIDT-KALER, F. ; SCHNITZLER, W. ; SINGER, K.: Towards the implanting of ions and positioning of nanoparticles with nm spatial resolution. In: *Applied Physics A: Materials Science and Processing* 91 (2008), 567-571. <http://dx.doi.org/10.1007/s00339-008-4515-1>. – ISSN 0947-8396

[Meijer u. a. 2006]

MEIJER, J. ; VOGEL, T. ; BURCHARD, B. ; RANGELOW, I.W. ; BISCHOFF, L. ; WRACHTRUP, J. ; DOMHAN, M. ; JELEZKO, F. ; SCHNITZLER, W. ; SCHULZ, S.A. ; SINGER, K. ; SCHMIDT-KALER, F.: Concept of deterministic single ion doping with sub-nm spatial resolution. In: *Applied Physics A: Materials Science and Processing* 83 (2006), 321-327. <http://dx.doi.org/10.1007/s00339-006-3497-0>. – 10.1007/s00339-006-3497-0. – ISSN 0947-8396

[Meyer u. a. 2007]

MEYER, J. C. ; GEIM, A. K. ; KATSNELSON, M. I. ; NOVOSELOV, K. S. ; BOOTH, T. J. ; ROTH, S.: The structure of suspended graphene sheets. In: *Nature* 446 (2007), Nr. 7131, 60-63. <http://dx.doi.org/10.1038/nature05545>. – DOI 10.1038/nature05545

[Naydenov u. a. 2010]

NAYDENOV, Boris ; RICHTER, V. ; BECK, Johannes ; STEINER, Matthias ; NEUMANN, Philipp ; BALASUBRAMANIAN, Gopalakrishnan ; ACHARD, Jocelyn ; JELEZKO, Fedor ; WRACHTRUP, Jörg ; KALISH, Rafi: Enhanced generation of single optically active spins in diamond by ion implantation. In: *Applied Physics Letters* 96 (2010), Nr. 16, 163108. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3409221>. – DOI 10.1063/1.3409221

[Neumann u. a. 2010]

NEUMANN, P. ; KOLESOV, R. ; NAYDENOV, B. ; BECK, J. ; REMPP, F. ; STEINER, M. ; JACQUES, V. ; BALASUBRAMIAM, G. ; MARKHAM, M. L. ; TWITCHEN, D. J. ; PEZZAGNA, S. ; MEIJER, J. ; TWAMLEY, J. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J.: Quantum register based on coupled electron spins in a room-temperature solid. In: *nature physics* 6 (2010), Nr. 4, 249-253. <http://dx.doi.org/10.1038/nphys1536>

[Nikiforov u. Bonnell 2007]

NIKIFOROV, Maxim P. ; BONNELL, Dawn A.: Scanning Probe Microscopy in Materials Science. Version: 2007. http://dx.doi.org/10.1007/978-0-387-49762-4_14. In: HAWKES, Peter W. (Hrsg.) ; SPENCE, John C. H. (Hrsg.): *Science of Microscopy*. Springer New York, 929-968. – Online-Ressource. – ISBN 978-0-387-49762-4

[van Oort u. a. 1990]

OORT, Eric van ; STROOMER, Paul ; GLASBEEK, Max: Low-field optically detected magnetic resonance of a coupled triplet-doublet defect pair in diamond. In: *Phys. Rev. B* 42 (1990), Nov, 8605-8608. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.42.8605>. – DOI 10.1103/PhysRevB.42.8605

[Pezzagna u. a. 2010a]

PEZZAGNA, S ; NAYDENOV, B ; JELEZKO, F ; WRACHTRUP, J ; MEIJER, J: Creation efficiency of nitrogen-vacancy centres in diamond. In: *New Journal of Physics* 12 (2010), Nr. 6, 065017. <http://stacks.iop.org/1367-2630/12/i=6/a=065017>

[Pezzagna u. a. 2011]

PEZZAGNA, Sébastien ; ROGALLA, Detlef ; WILDANGER, Dominik ; MEIJER, Jan ;

ZAITSSEV, Alexander: Creation and nature of optical centres in diamond for single-photon emission—overview and critical remarks. In: *New Journal of Physics* 13 (2011), Nr. 3, 035024. <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=3/a=035024>

[Pezzagna u. a. 2010b]

PEZZAGNA, Sébastien ; WILDANGER, Dominik ; MAZAROV, Paul ; WIECK, Andreas D. ; SAROV, Yanko ; RANGELOW, Ivo ; NAYDENOV, Boris ; JELEZKO, Fedor ; HELL, Stefan W. ; MEIJER, Jan: Nanoscale Engineering and Optical Addressing of Single Spins in Diamond. In: *Small* 6 (2010), Nr. 19, 2117–2121. <http://dx.doi.org/10.1002/smll.201000902>. – ISSN 1613–6829

[Raizen u. a. 1992]

RAIZEN, M. G. ; GILLIGAN, J. M. ; BERGQUIST, J. C. ; ITANO, W. M. ; WINELAND, D. J.: Ionic crystals in a linear Paul trap. In: *Phys. Rev. A* 45 (1992), May, 6493–6501. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.45.6493>. – DOI 10.1103/PhysRevA.45.6493

[Rand u. a. 1994]

RAND, S.C. ; LENEFF, A. ; BROWN, S.W.: Zeeman coherence and quantum beats in ultrafast photon echoes of N-V centers in diamond. In: *Journal of Luminescence* 60–61 (1994), Nr. 0, 739 – 741. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313\(94\)90265-8](http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313(94)90265-8). – <xocs:full-name>International Conference on Luminescence</xocs:full-name>. – DOI 10.1016/0022–2313(94)90265–8. – ISSN 0022–2313

[Reichling u. Barth 1999]

REICHLING, M. ; BARTH, C.: Scanning Force Imaging of Atomic Size Defects on the CaF₂(111) Surface. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), Jul, 768–771. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.768>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.83.768

[Rittweger u. a. 2009]

RITTWEGER, E. ; YOUNG HAN, K. ; IRVINE, S. E. ; EGGELING, C. ; HELL, S.: STED microscopy reveals crystal colour centres with nanometric resolution. In: *Nature Photonics* 3 (2009), Nr. 3, 144–147. <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2009.2>

[Schneider 1995]

SCHNEIDER, M.: *Untersuchung mikromagnetischer Strukturen in einkristallinen Eisenschichten mit einem kombinierten Kerr-Kraftmikroskop*, Universität Köln, Diss., 1995

[Schnitzler 2010]

SCHNITZLER, W.: *Deterministic ultracold ion source targeting the Heisenberg limit*, Universität Ulm, Diss., 2010

[Schnitzler u. a. 2009]

SCHNITZLER, W. ; LINKE, N. M. ; FICKLER, R. ; MEIJER, J. ; SCHMIDT-KALER, F. ; SINGER, K.: Deterministic Ultracold Ion Source Targeting the Heisenberg Limit. In: *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), Feb, 070501. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.070501>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.102.070501

[Schnitzler u. a. 2010]

SCHNITZLER, Wolfgang ; JACOB, Georg ; FICKLER, Robert ; SCHMIDT-KALER, Ferdinand ; SINGER, Kilian: Focusing a deterministic single-ion beam. In: *New Journal of Physics* 12 (2010), Nr. 6, 065023. <http://stacks.iop.org/1367-2630/12/i=6/a=065023>

[Shor 1997]

SHOR, Peter W.: Polynomial time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. In: *SIAM J. Sci. Statist. Comput.* 26 (1997), S. 1484

[Sidorov u. a. 2005]

SIDOROV, V. A. ; EKIMOV, E. A. ; STISHOV, S. M. ; BAUER, E. D. ; THOMPSON, J. D.: Superconducting and normal-state properties of heavily hole-doped diamond. In: *Physical Review Letters B* 71 (2005), Nr. 6, 060502. <http://adsabs.harvard.edu/abs/2005PhRvB..71f0502S>

[Sonnefraud u. a. 2008]

SONNEFRAUD, Yannick ; CUCHE, Aurélien ; FAKLARIS, Orestis ; BOUDOU, Jean-Paul ; SAUVAGE, Thierry ; ROCH, Jean-François ; TREUSSART, François ; HUANT, Serge: Diamond nanocrystals hosting single nitrogen-vacancy color centers sorted by photon-correlation near-field microscopy. In: *Opt. Lett.* 33 (2008), Mar, Nr. 6, 611–613. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.33.000611>. – DOI 10.1364/OL.33.000611

[de Sousa u. Das Sarma 2003]

SOUSA, Rogerio de ; DAS SARMA, S.: Electron spin coherence in semiconductors: Considerations for a spin-based solid-state quantum computer architecture. In: *Phys. Rev. B* 67 (2003), Jan, 033301. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.67.033301>. – DOI 10.1103/PhysRevB.67.033301

[Spear u. Dismukes 1994]

SPEAR, H. E. ; DISMUKES, J. P.: *Synthetic Diamond - Emerging CVD Science and Technology*. New York, USA : John Wiley and Sons, 1994

[Ulm 2010]

ULM, S.: *Spektroskopie gemischter Ionenkristalle*, Universität Ulm, Diplomarbeit, 2010

[Waldherr u. a. 2011a]

WALDHERR, G. ; BECK, J. ; STEINER, M. ; NEUMANN, P. ; GALI, A. ; FRAUENHEIM, Th. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J.: Dark States of Single Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond Unraveled by Single Shot NMR. In: *Phys. Rev. Lett.* 106 (2011), Apr, 157601. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.157601>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.106.157601

[Waldherr u. a. 2011b]

WALDHERR, G. ; NEUMANN, P. ; HUELGA, S. F. ; JELEZKO, F. ; WRACHTRUP, J.: Violation of a Temporal Bell Inequality for Single Spins in a Diamond Defect Center. In: *Phys. Rev. Lett.* 107 (2011), Aug, 090401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.090401>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.107.090401

[Waser 2005]

WASER, R.: *Nanoelectronics and Information Technology: Materials, Processes, Devices*. Weinheim : Wiley-VCH Verlag GmbH and Co. KGaA, 2005

[Webb 1996]

WEBB, Robert H.: Confocal optical microscopy. In: *Reports on Progress in Physics* 59 (1996), Nr. 3, 427. <http://stacks.iop.org/0034-4885/59/i=3/a=003>

[Weismann u. a. 2009]

WEISMANN, Alexander ; WENDEROTH, Martin ; LOUNIS, Samir ; ZAHN, Peter ; QUAAS, Norbert ; ULBRICH, Rainer G. ; DEDERICHS, Peter H. ; BLÄGEL, Stefan: Seeing the Fermi Surface in Real Space by Nanoscale Electron Focusing. In: *Science* 323 (2009), Nr. 5918, 1190-1193. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1168738>. – DOI 10.1126/science.1168738

[Williams u. Carter 2009]

WILLIAMS, D. B. ; CARTER, C. B.: *Transmission Electron Microscopy - A Textbook for Materials Science*. Berlin : Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2009

[Wittmann 2005]

WITTMANN, C.: *Kontrollierbare Positionierung von Defektzentren in Diamant*, Universität Stuttgart, Diplomarbeit, 2005

[Wolter u. a. 1991]

WOLTER, O. ; BAYER, Th. ; GRESCHNER, J.: Micromachined silicon sensors for scanning force microscopy, AVS, 1353-1357

[Wrachtrup u. Jelezko 2006]

WRACHTRUP, Jörg ; JELEZKO, Fedor: Processing quantum information in diamond. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 18 (2006), Nr. 21, S807. <http://stacks.iop.org/0953-8984/18/i=21/a=S08>

[Zaitsev 2001]

ZAITSEV, A. M.: *Optical properties of diamond: a data handbook*. Berlin : Springer Verlag Berlin Heidelberg, 2001

[Zhang u. a. 2007]

ZHANG, Bo ; ZERUBIA, Josiane ; OLIVO-MARIN, Jean-Christophe: Gaussian approximations of fluorescence microscope point-spread function models. In: *Appl. Opt.* 46 (2007), Apr, Nr. 10, 1819–1829. <http://dx.doi.org/10.1364/AO.46.001819>. – DOI 10.1364/AO.46.001819

[Zheng 2010]

ZHENG, D.: *Study and Manipulation of Photoluminescent NV Color Center in Diamond*, Ecole Normal Supérieure de Cachan and East China Normal University, Diss., 2010

Eidesstattliche Erklärung

Ich versichere, dass ich meine Diplomarbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder anderen Quellen entnommen sind, sind als solche eindeutig kenntlich gemacht. Die Arbeit ist in gleicher oder ähnlicher Form noch nicht veröffentlicht und noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegt worden.

Mainz, den 01. Dezember 2011

Stefan Weidlich