Johannes Gutenberg-Universität Mainz Institut für Physik - Arbeitsgruppe QUANTUM



Diplomarbeit

Aufbau eines Messplatzes zur optischen **Detektion magnetischer Resonanz und Manipulation von NV-Zentren**

vorgelegt von

Johannes Verst

16. September 2014

Erstgutachter:

Prof. Dr. Ferdinand Schmidt-Kaler Zweitgutachter: Prof. Dr. Werner Heil

Abstract

NV-centers in diamond represent an outstanding architecture for quantum information processes in a solid-state system. To produce scalable and reproducible arrays of NVqubits on nanometric scale, a deterministic single ion implantation is necessary. It is becoming realized in our workgroup. This setup includes a confocal microscope, which is able to detect single NV-centers. Furthermore some technics to readout the interaction of implanted nuclear spin arrays have to be implemented and optimised.

In the scope of this work a setup for optical detection of magnetic resonance (ODMR) was developed, build and its capabilities explored. The optical detection was complimented by microwave excitation to manipulate the intern spin degree of freedom of single NV-centers. The ODMR allows not only the determination of the width, the displacement and the splitting of spectral lines but also drawing conclusions on the important physical properties of the future quantum memory. The setup consists of sequential controllable components. It includes a microwave signal generator, a microwave amplifier and an antenna, which is placed over the NV-center. In addition the setup contains a nanopositioning system for the diamond, which allows its fully computer controlled measurement with sub-nanometric precision in three dimensions. For microwave spectroscopy of NV-centers a coplanar waveguide was produced. Also a permanent magnet and an electromagnet were developed for the Zeeman splitting of the magnetic spin states. By means of ODMR spectra the Zeeman splitting in an external field up to 100 Gauss and the energy level splitting by strain of the ground state was measured. Hence the Larmor precession of the electron spin and the interaction of the electron spin with the surrounding spins were determined. By implementing pulsed measurement sequences the Rabi oscillation between the electron spin states was driven and a duration of the $\pi/2$ pulse of 27 ns could be achieved. Further relaxation times of $T_1 = 67,8 \ \mu\text{s}, T_2 \leq 11,9 \ \mu\text{s}$ and $T_2^* = 0,5 \ \mu\text{s}$ of a NV-center was determined by Ramsey method and the measurement of the spin-echo amplitude. During which this a periodic coupling of the election spin and the nuclear spin was observed.

With this ODMR-setup and its characterisation the way is cleared for its complete integration in the implantation setup. To realize the efficient production of NV-centers in diamond and their in-situ characterisation the components have to be made compatible to the ultra-high vacuum setup.

Zusammenfassung

NV-Zentren in Diamant stellen eine hervorragende Architektur zur Quanteninformationsverarbeitung in einem Festkörpersystem dar. Zur Herstellung skalierbarer und reproduzierbarer Anordnungen von NV-Qubits auf der Nanometer-Skala ist eine deterministische Einzelionenimplantation nötig, die in der Arbeitsgruppe realisiert wird. Dieser Aufbau beinhaltet ein konfokales Mikroskop zum Detektieren einzelner NV-Zentren. Ferner müssen Techniken zum Auslesen der Wechselwirkung implantierter Kernspinarrays experimentell implementiert und optimiert werden.

Diese Arbeit umfasst die Planung, Realisierung und Charakterisierung eines Messplatzes zur optischen Detektion magnetischer Resonanz (ODMR) und Manipulation interner Spin-Freiheitsgrade von NV-Zentren in Diamant. Die ODMR erlaubt nicht nur die Bestimmung der Breite, Verschiebung und Aufspaltung der Spektrallinien, sondern auch Rückschlüsse auf wichtige Kenngrößen des zukünftigen Quantenspeichers. Der Aufbau besteht zur Ergänzung der optischen Detektion durch Mikrowellenanregung unter anderem aus einem Mikrowellensignalgenerator, einem -verstärker und einer über dem NV-Zentrum platzierten Antenne. Zudem beinhaltet er ein Nanopositioniersystem, welches vollständig computergesteuert die dreidimensionale Vermessung des Diamanten mit Sub-Nanometer-Genauigkeit erlaubt. Weiter wurde ein Permanent- und ein Elektromagnet zur Aufspaltung der magnetischen Spinzustände sowie ein koplanarer Wellenleiter entwickelt. Mittels ODMR-Spektren wurde die Zeeman-Aufspaltung im externen Magnetfeld von bis zu 100 Gauß und daraus die Larmor-Präzession sowie die Aufspaltung der Energieniveaus des Grundzustands durch das kristalline Spannungsfeld bestimmt. Durch gepulste Messsequenzen konnte Rabioszillation zwischen Spinzuständen des Elektrons getrieben und eine $\pi/2$ -Zeit von 27 ns erreicht werden. Ferner konnten die Relaxationszeiten von $T_1 = 67, 8 \ \mu s, T_2 \le 11, 9 \ \mu s \ und T_2^* = 0, 5 \ \mu s \ des \ NV-Zentrums$ unter anderem durch die Ramsey-Methode und das Spin-Echo-Signal bestimmt und die periodische Kopplung des Elektronenspins mit dem Kernspin gemessen werden.

Mit dem Aufbau des ODMR-Messplatzes und dessen Charakterisierung ist der Weg frei zu seiner vollständigen Integration in den Implantationsaufbau. Dazu müssen die Komponenten in eine Ultrahochvakuum-Apparatur eingepasst werden, um die effiziente Produktion von NV-Zentren in Diamant und deren in-situ Charakterisierung zu ermöglichen.

Inhaltsverzeichnis

1.	Mot		1		
2.	Theoretischer Hintergrund				
	2.1.	Quante	eninformation	5	
		2.1.1.	Grundlagen	5	
		2.1.2.	Realisierbarkeit	8	
	2.2.	Das N	V-Zentrum	9	
		2.2.1.	Diamant	10	
		2.2.2.	Das NV-Zentrum	11	
		2.2.3.	Elektrische Zustände	13	
		2.2.4.	Das NV-Zentrum in äußeren Feldern	18	
	2.3.	Konfol	kale Fluoreszenzmikroskopie	19	
	2.4.	Manip	ulation von NV-Zentren	21	
		2.4.1.	ODMR	22	
		2.4.2.	Rabioszillation	24	
		2.4.3.	Dichtematrix-Formalismus und Optische Bloch-Gleichungen	27	
		2.4.4.	Relaxationsprozesse	30	
3.	Das	Setup		35	
	3.1.	Optisc	hes Setup	35	
	3.2.	Techni	sches Setup	38	
		3.2.1.	Mikroskoptisch	41	
		3.2.2.	Mikrowellenantenne	43	
		3.2.3.	Permanent- und Elektromagnet	46	
		3.2.4.	Experimentsteuerung	53	
4.	Expe	eriment	e und Ergebnisse	55	
	4.1.	Mikros	skopie	56	
		4.1.1.	Auflösungsvermögen	57	
		4.1.2.	Detektionseffizienz und Sättigungsverhalten	60	
		4.1.3.	Stabilität des Aufbaus	63	
	4.2.	ODME	{	65	
		4.2.1.	Nullfeld-Aufspaltung	65	

		4.2.2.	Aufspaltung durch das kristalline Spannungsfeld	í					
		4.2.3.	Zeeman-Aufspaltung	,					
		4.2.4.	Magnetfeldvermessung						
		4.2.5.	Charakterisierung der ODMR-Spektroskopie	;					
	4.3.	Gepuls	ste Messungen	,					
		4.3.1.	Rabioszillation)					
		4.3.2.	Longitudinale Relaxationszeit)					
		4.3.3.	Ramsey-Sequenz	;					
		4.3.4.	Spin-Echo	;					
5.	Aust	olick	91	•					
Α.	Anha	ang	93	5					
	A.1.	ECL-E	30x	;					
	A.2.	Im Set	up verwendete Teile)					
в.	Anha	ang	97	,					
	B.1.	Ergänz	zungen zur Simulation des Elektromagneten	,					
		C. Anhang 101							
C.	Anha	ang	101						

Motivation

Die Informations- und Kommunikationstechnologie unterliegt einem stetigen Trend der Miniaturisierung und zur Steigerung der Komplexität. Hinzu kommt klassische Informationsverarbeitung nicht in der Lage ist größere physikalische Systeme unter Berücksichtigung ihrer quantenmechanischen Eigenschaften zu berechnen. Diesen Herausforderungen stellt sich die konsequente Weiterentwicklung der Quanteninformationstechnologie. Sie erlaubt die Simulation physikalischer Systeme und kann unter Verwendung von Quantenbits (Qubits) Prozesse schneller und Kommunikation sicherer abwickeln, als es klassisch möglich ist. Der Grover-Algorithmus [Gro97], der Shor-Algorithmus [Sho97] und das BB84-Protokoll [BB84] stellen dies eindrucksvoll unter Beweis. Die Anforderungen an einen Quantencomputer von D. P. DiVincenzo [DiV00] werden von einigen Quantensystemen bereits großteils erfüllt.

Das Stickstofffehlstellenzentrum (nitrogen vacancy center, NV-Zentrum) in Diamant [DH76] ist ein Kandidat für ein Qubit, welches eingebettet in ein Festkörpersystem der technologischen Umsetzung besonders nahe ist. Es lässt sich im Grundzustand initialisieren [HSM04] und sein Zustand ist einzeln optisch auslesbar [GDT⁺97]. Die Zustandsmanipulation am NV-Zentrum geschieht durch Mikrowelle [JGP⁺04b]. Dies ermöglicht zusammen mit Radiofrequenzen die Kontrolle der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen dem Elektronenspin und einem benachbarten Kernspin und

1. Motivation

damit die Nutzung des Kernspins als Qubit [SMC09]. Auch der Zustand dieses Qubits lässt sich gezielt auslesen [NBS⁺10]. Neben Einzelqubit-Gattern lassen sich so auch Zweiqubit-Gatter realisieren [JGP⁺04a], sodass ein nach D. P. DiVincenzo notwendiger universaler Satz an Gatter-Operationen vorhanden ist. Auch existieren lange Kohärenzzeiten [BNT⁺09], durch die effektive Quantenregister bei Raumtemperatur möglich sind [NKN⁺10, CJHL09]. Ein letztes Kriterium, welches es zu erfüllen gilt, ist die Skalierbarkeit. Die Ansätze hin zu nanometergenauen Implantationsverfahren wurden bereits umgesetzt [MBD⁺05, RRT⁺06, MPV⁺08]. Kann diese Implantation deterministisch vorgenommen werden und nicht nur die Auflösung im Bereich weniger Nanometer, sondern ebenfalls die Umgebung des implantierten Qubits bestimmt werden, so ist dies ein entscheidender Schritt in Richtung der Realisierung eines vollwertigen Quantencomputers [NRB⁺10]. Das Konzept [MVB⁺06] wurde auf Basis einer segmentierten Ionenfalle mit lasergekühlten Ionen zu einer deterministischen Einzelionenquelle umgesetzt [SLF⁺09] und befindet sich weiter in der Entwicklung [Wei11, Wol12, JGW⁺14].

Diese Arbeit stellt einen Messplatz zur optischen Detektion magnetischer Resonanz (ODMR) des Elektronenspins von NV-Zentren bereit. Ausgangspunkt war ein Aufbau zur konfokalen Mikroskopie, der mit den notwendigen Mikrowellentechniken ergänzt wurde, sodass der Qubitzustand ausgelesen, manipuliert und seine Wechselwirkung mit der Umgebung, zum Beispiel die Dekohärenz untersucht werden kann. Die Planung, Realisierung und Charakterisierung des Setups geschehen stets in Hinblick auf die Vereinigung mit dem Implantationsaufbau zur in-situ Charakterisierung implantierter NV-Zentren.

Das zweite Kapitel beschreibt Grundlagen der Quanteninformation und den theoretischen Hintergrund des NV-Zentrums als Defekt in Diamant. Weiterhin wird die konfokale Mikroskopie zur optischen Detektion und Grundzustandsinitialisierung vorgestellt. Anschließend folgt eine Erläuterung der Elektronenspinresonanz sowie der Nutzung von Mikrowellen zur Manipulation von NV-Zentren. Dabei wird auch auf die zur Umgebungscharakterisierung wichtigen Relaxationsprozesse eingegangen.

Das dritte Kapitel stellt das errichtete technische und optische Setup vor. Der Fokus liegt auf einem stabilen Mikroskoptisch, der Herstellung einer Mikrowellenantenne und der Entwicklung eines Elektromagneten für die gezielte Zeeman-Aufspaltung von Zuständen des NV-Zentrums. Des Weiteren wird auf die sequenzielle Steuerung der Einzelkomponenten eingegangen. Das vierte Kapitel widmet sich der Charakterisierung des ODMR-Messplatzes. Dies umfasst sowohl das Auflösungsvermögen des Mikroskops und dessen Detektionseffizienz, als auch die ODMR-Spektroskopie mit ihren Möglichkeiten der Zustandsanalyse. Zuletzt werden gepulste Messungen, wie die der Rabioszillation zur kohärenten Kontrolle des Elektronenspins, der Ramsey-Sequenz und des Spin-Echos zur Charakterisierung der Umgebung des NV-Zentrums vorgestellt.

Das fünfte Kapitel resümiert zentrale Ergebnisse und gibt einen Ausblick auf zukünftige Entwicklungsarbeiten, um die Herstellung skalierbarer Qubit-Arrays in Diamant zu ermöglichen. 1. Motivation

2

Theoretischer Hintergrund

2.1. Quanteninformation

Die Quanteninformation bietet ungeahnte Möglichkeiten und unterscheidet sich grundlegend von der klassischen Informationstheorie. Quantencomputer und Quantenkryptographie basieren auf einigen grundlegenden Gesetzen der Quantenmechanik. Durch sie lassen sich bestimmte komplexe Berechnungen in viel kürzerer Zeit durchführen. Manche Simulationen physikalischer Systeme, die niemals mit klassischen Methoden in endlicher Zeit berechnet werden könnten, werden berechenbar. Die Verschlüsselung wirklich sicherer Kommunikation wird möglich. Die technische Umsetzung der Quanteninformation ist in greifbare Nähe gerückt. Nun werden erstmal einige Grundlagen aufgeführt.

2.1.1. Grundlagen

Die kleinstmögliche Einheit der klassischen Nachrichten- und Informationstechnik ist das *Bit.* Es kann die Werte 0 und 1 annehmen. Als Maß gibt es auch den Informationsgehalt oder eine Datenmenge wieder. Die zwei möglichen Werte eines Bits können für Rechenoperationen durch Zuordnung von Wahrheitswerten genutzt werden. Durch Kombination mehrerer Bits lassen sich Binärzahlen darstellen. Auf dem Bit basiert die gesamte Digitaltechnik, die wir kennen. Eine höhere und eine niedrigere Spannung als ein Schwellwert, oder ein Transistor, der geschaltet, oder nicht-geschaltet ist kann ein solches Bit repräsentieren. Solch ein Transistor wird, vereinfacht gesagt, in großer Stückzahl zu integrierten Schaltkreisen und mehrere dieser wiederum zu Prozessoren verarbeitet, deren Aufgabe die Datenverarbeitung, wie auch die Kommunikation mit anderen Systemkomponenten ist. G. E. Moore stellte im Jahr 1965, kurz nach der Erfindung des integrierten Schaltkreises, die Behauptung auf, die Komplexität integrierter Schaltkreise würde sich, halbjährig bis einjährig verdoppeln [Moo65]. Es gibt viele Interpretationen des empirischen Gesetzes, doch ein Sachverhalt ist unumstritten: Da die Schaltkreise immerzu kleiner werden müssen, ist irgendwann die atomare Skala erreicht. Hier ist nach dem herkömmlichen Prinzip der Prozessorherstellung ein Punkt erreicht, an dem nicht kleiner produziert werden kann.

Genau an diesem Punkt setzen die Quanteninformationsverarbeitung und Quantenkommunikation an. Ab diesem Zeitpunkt kann nur eine Steigerung der Komplexität durch die Verwendung von Quantensystemen geschehen. Deren kleinstmögliche Einheit ist das *Qubit*. Die Basiszustände werden in der Dirac-Notation mit $|0\rangle$ und $|1\rangle$ bezeichnet. Der Zustand des Qubits selbst wird jedoch allgemein durch die Superposition dargestellt:

$$|\Psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle \text{ mit } \alpha, \beta \in \mathbb{C}$$
 (2.1)

Hier ist $|\Psi\rangle$ ein Element des zweidimensionalen Hilbertraums und es gilt $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$. Anders als bei dem klassischen Bit, kann bei der Messung eines Qubits nicht der komplette Zustand gemessen werden. Es bedarf vieler Messungen zur näherungsweisen Bestimmung der Amplituden der Basiszustände. Der gesamte Zustand zweier Qubits kann durch den Produktzustand

$$|\Psi\rangle = |\Psi_1\rangle \otimes |\Psi_2\rangle \tag{2.2}$$

$$= \alpha_1 \alpha_2 |00\rangle + \alpha_1 \beta_2 |01\rangle + \beta_1 \alpha_2 |10\rangle + \beta_1 \beta_2 |11\rangle$$
(2.3)

oder aber durch einen verschränkten Zustand, wie zum Beispiel einen der Bellzustände $|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|00\rangle - |11\rangle)$ dargestellt werden. Verschränkte Zustände sind all solche, die nicht als Produktzustand geschrieben werden können.

Der entscheidende Vorteil der Quanteninformation liegt nun nicht allein darin, dass das Mooresche Gesetz eventuell auch auf atomarer Ebene weiter Bestand haben kann, indem die Bits durch Qubits ersetzt und die Schaltkreisarchitektur verändert werden. Die Quanteninformation kann bei einigen Algorithmen einen enormen Unterschied der Menge an nötigen Berechnungsschritten aufweisen. Ein moderater Fortschritt ist bei der Durchsuchung einer Datenbank mit n Einträgen nach einem bestimmten Eintrag gegenüber klassischen Verfahren zu erwarten [Gro97]. Bei der Faktorisierung nach dem Shor-Algorithmus [Sho97] steigt dieser Fortschritt jedoch exponentiell und kann zum Beispiel zum Entschlüsseln verwendet werden.

Für den Geschwindigkeitsvorteil ist auch der Unterschied an Operationen, die an einem Qubit durchgeführt werden können, verglichen mit denen, die an einem Bit durchgeführt werden können, verantwortlich. Quantenmechanisch entspricht die Operation einer unitären Transformation, die als Hamiltonoperator auf den Zustand des Qubits angewandt werden kann. Eine solche Operation wird in der Quanteninformation als Gatter bezeichnet. An einem einzelnen klassischen Bit kann nur die Operation Bit Flip durchgeführt werden. Der Zustand eines Qubits kann auf der gesamten Bloch-Kugel, siehe Kapitel 2.4.3 gedreht werden, also jeden beliebigen Zustand aus Gleichung 2.1 im zweidimensionalen Hilbertraum annehmen. Eine solche Rotation führt zum Beispiel das Hadamard-Gatter durch, das wie folgt gegeben ist:

$$H = \frac{|0\rangle + |1\rangle}{\sqrt{2}} \langle 0| + \frac{|0\rangle - |1\rangle}{\sqrt{2}} \langle 1| \qquad (2.4)$$

Angewandt auf den reinen Zustand $|0\rangle$ oder $|1\rangle$ liefert die Transformation

$$H|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle + |1\rangle) \text{ oder}$$

$$H|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle - |1\rangle). \qquad (2.5)$$

Ergänzt man das CNOT-Gatter zum Repertoire, lassen sich theoretisch fast alle Quantenalgorithmen durchführen. Das CNOT-Gatter ist das Pendant zum klassischen XOR-Gatter. Die XOR-Operation liefert als Ergebnis eine 0, sofern beide Eingänge den gleichen Wert und eine 1, falls beide Eingänge verschiedene Werte aufweisen. Wird das CNOT-Gatter auf den Zustand $|ij\rangle$ angewandt, so wird j invertiert, falls i = 1 ist, andernfalls bleibt j unverändert.

2.1.2. Realisierbarkeit

Die erste theoretische Beschreibung eines Quantencomputers durch R. P. Feynman ging zurück ins Jahr 1982 [Fey82]. Arbeiten von D. Deutsch aus zum Beispiel [Deu89] wurden zum Vorbild für einen Algorithmus von L. K. Grover [Gro97] zur linearen Durchsuchung einer ungeordneten Datenbank. Klassisch werden hier bei n Einträgen n Schritte benötigt, um den gesuchten Eintrag zu finden, der Grover-Algorithmus braucht nur \sqrt{n} Schritte. Ebenfalls nutzte P. W. Shor die Arbeit von D. Deutsch zur Ausarbeitung des nach ihm benannten Shor-Algorithmus [Sho97] zur deutlich effektiveren Primfaktorzerlegung.

Schließlich war es D. P. DiVincenzo, der im Jahr 2008 in [DiV00] die fünf essentiell notwendigen Eigenschaften eines Quantencomputers formulierte:

1. Es bedarf eines skalierbaren physikalischen Systems mit gut charakterisierbaren Qubits.

Gut charakterisiert bedeutet in diesem Fall, dass der Hamiltonoperator sowie die Wechselwirkung mit andern Qubits und mit externen Feldern bekannt ist.

- 2. Es muss eine Initialisierung des Qubits, bevorzugt in $|000...\rangle$ möglich sein.
- 3. Das System muss Dekohärenzzeiten aufweisen, die länger sind als die Gatter-Operationen.

Die Dekohärenzzeit ist die Zeit, die ein Zustand, zum Beispiel der aus Gleichung 2.1 benötigt, um in ein Gemisch, in diesem Fall $\rho = |a|^2 |0\rangle \langle 0| + |b|^2 |1\rangle \langle 1|$ übergegangen zu sein.

- 4. Es wird eine "universelle" Palette an Quantengattern benötigt. Diese ist nötig, um jeden beliebigen Quantenalgorithmus ausführen zu können. Ein Quantenalgorithmus ist eine Sequenz unitärer Transformationen, die als Hamilton dargestellt und hintereinander ausgeführt werden können müssen.
- 5. Es muss möglich sein die einzelnen Qubits, sprich deren Zustand auslesen zu können.

D. P. DiVincenzo verfasste zwei weitere Forderungen für die Möglichkeit der Quantenkommunikation:

6. Die Fähigkeit des gegenseitigen Umwandelns von stationären und beweglichen Qubits ist notwendig.

7. Die beweglichen Qubits müssen präzise zwischen bestimmten Orten transferiert werden können.

Ein Zwei-Niveau-System, welches als Qubit genutzt wird, kann durch viele Möglichkeiten realisiert werden. Zum Beispiel können zwei Polarisationszustände eines Photons verwendet werden. Deren Vorteil ist die geringe Wechselwirkung mit der Umwelt, sodass DiVincenzos 3. Kriterium wenig Beachtung geschenkt werden muss. Damit eignet es sich hervorragend für die Quantenkommunikation, also zum Beispiel den Informationsaustausch nach dem abhörsicheren BB84-Protokoll [BB84]. Gefangene Ionen oder Atome haben eine lange Lebensdauer und lassen sich durch Verschränkung gut als Quantenregister und zur Quanteninformationsverarbeitung verwenden [CZ95, Kan98]. Auch in Festkörpern lassen sich Quantendots in Halbleitern [LD98] oder Donatoren [VYW⁺99] ebenso verwenden, wie supraleitende Materialien zum Beispiel in Form einer Josephson-Kontakt [CW08].

2.2. Das NV-Zentrum

Neben all den erwähnten Kandidaten zur Realisierung eines Quantencomputers, ist vor allem das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum (NV-Zentrum) mit benachbartem ¹³C-Kernspin ein Favorit [NKJ⁺05] und nach den DiVincenzo-Kriterien aus Kapitel 2.1.2 nahe an der Realisierbarkeit. Verglichen mit anderen Systemen sind keine Fallen von Nöten, um überhaupt erst Qubits erzeugen zu können. Sie sitzen bereits fest im Diamanten und sind selbst bei Raumtemperatur optisch initialisier- und auslesbar. Auch sind sie leicht durch elektromagnetische Felder kontrollierbar, da ihre Wechselwirkung bereits gut studiert wurde. Sie besitzen eine hohe Fluoreszenz-Quantenausbeute und sind sehr stabil gegen Ausbleichen. Unter einfach zu realisierenden Bedingungen weisen sie lange Dekohärenzzeiten und reine Spinzustände auf. Auch die Skalierbarkeit wird sicher in naher Zukunft keine Hürde mehr darstellen. In kleinem Maßstab wurden bereits mehrere NV-Zentren untereinander verschränkt, deren Information auf einen benachbarten Kernspin übertragen und sogar Quantenregister verwirklicht. Es sind also nur noch wenige Schritte nötig, um das NV-Zentrum effektiv in der Quanteninformationsverarbeitung einzusetzen.

2.2.1. Diamant

Diamant ist neben Graphit und Fulleren einer der drei natürlich vorkommenden elementaren Modifikationen des Kohlenstoffs. Die Kristallstruktur besteht aus einem kubisch flächenzentrierten Bravais-Gitter, welches die zweiatomige Basis $\{(0,0,0)^{\mathrm{T}}, (\frac{1}{4}, \frac{1}{4}, \frac{1}{4})^{\mathrm{T}}\}$ [MA76] und eine Bindungslänge von 1,54 Å [Spe89] besitzt. Durch diese sp^3 -Hybridisierung gehen von jedem Kohlenstoffatom C vier kovalente Bindungen mit einer Bindungsenergie von 7,3 eV pro Atom aus und machen damit Diamant mit einer anisotropen Härte von maximal 10 Mohs [Spe89] zum härtesten Material in der Natur. Er eignet sich somit hervorragend zum Schneiden, Schleifen und als Verschleißschutz.

Eine weitere Konsequenz der Diamantstruktur ist eine hohe Debye-Temperatur von 2200 K. Weit unterhalb dieser Temperatur ist die Phononen-Phononen-Streuung so gering, dass Gitterschwingungen bei Raumtemperatur fast vollständig ausbleiben und eine gute Wärmeleitfähigkeit von bis zu 33,2 $\frac{W}{cm K}$ [ABF+90] vorherrscht. Weiterhin macht ihn seine Struktur zum perfekten elektrischen Isolator. Diese Eigenschaften qualifizieren Diamant als Trägermaterial für Starkstromschaltkreise. Eine Bohr-, Phosphoroder Stickstoffdotierung lässt ihn als Halb-, oder Supraleiter verwenden. Die elektrische Bandlücke von 5,45 eV [Spe89] zwischen Valenz- und Leitungsband führt zu einem hohen Transmissionsgrad für den gesamten sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums bis zum nahen Infrarot und macht Diamant damit bedeutsam für eine Vielzahl an optischen Anwendungen.

Anhand des Grads der Verunreinigung durch Stickstoff N werden grundsätzlich vier Diamant-Typen unterschieden. Die Kategorisierung kann Tabelle 2.1 entnommen werden.

Typ	Eigenschaft	Stickstoffkonzentration [ppm]
Ia	Anhäufungen von Stickstoff	< 3000
Ib	Verteilung von Stickstoff	< 500
IIa	sehr geringer Stickstoffgehalt	$\lesssim 1$
IIL	Bor Verunreinigung	< 1
110	(p-dotierter Halbleiter)	~ 1

Tabelle 2.1.: Diamant-Typen [Wal79]

Um Diamanten mit definierten Eigenschaften zu erhalten, werden diese gewöhnlich nicht aus natürlichen Vorkommen bezogen, sondern speziell hergestellt. In der *high preasure high temperature method* (HPHT-Methode) [How60] wird aus Graphit mittels hohem Druck, bei hoher Temperatur Diamant gefertigt. Diese synthetischen Diamanten weisen meist einen hohen Stickstoffanteil [AJBB10] auf und fallen in die Kategorie Ib. Für zum Beispiel Halbleiteranwendungen und die Quanteninformationsverarbeitung eignet sich die *chemical vapor deposition method* (CVD-Methode) [YKKM91] am besten. Hier wird aus einer Gasphase, die circa zu 99 % aus Wasserstoff und zu 1 % aus einer Kohlenstoffquelle, wie Methan oder Acetylen besteht, an einer heißen Oberfläche durch eine chemische Reaktion mithilfe von Plasma Kohlenstoff abgeschieden. Mit diesem Verfahren lassen sich hochreine Diamanten vom Typ IIa mit einem Stickstoffanteil von weniger als der messbaren Grenze von 0,1 ppb [BBC⁺09] herstellen. Außerdem lässt sich das Vorkommen von paramagnetischem ¹³C von normalerweise circa 1 % deutlich reduzieren, sodass ein ¹²C Gehalt von bis zu 99, 999 % erreicht werden kann.

In Diamant vom Typ IIa ist das Spinbad sehr schwach, da der ¹²C einen Spin S = 0, der ¹³C einen Spin $S = \frac{1}{2}$ aufweist, der ¹³C allerdings nur in sehr geringer Menge vorkommt. Die Elektronenspins des Stickstoffs tragen aufgrund ihrer geringen Konzentration ebenfalls kaum bei, sodass lange Kohärenzzeiten möglich sind [BNT⁺09].

2.2.2. Das NV-Zentrum

Es existieren viele bekannte Defekte im Diamantgitter. Der trivialste Defekt ist eine Fehlstelle, also das Fehlen eines Kohlenstoffatoms an einem Gitterplatz. Es kann sowohl als Elektronendonator, als auch als -akzeptor fungieren. Befindet sich, wie in Abbildung 2.1 zu sehen, als einer der vier nächsten Nachbarn zu dieser Fehlstelle V, statt eines Kohlenstoffatoms, ein Stickstoffatom N, handelt es sich um den wohl bekanntesten Defekt in Diamant, das *NV-Zentrum* (nitrogen-vacancy-center).

Die Symmetrieachse des NV-Zentrums verläuft entlang der Verbindungslinie zwischen Stickstoffatom und Fehlstelle. Es existieren nur vier Orientierungen des NV-Zentrums im Diamantgitter, sodass zwei benachbarte NV-Zentren entweder parallel, oder in einem Winkel von circa 109° zueinander orientiert sein können. Normalerweise findet man alle Orientierungen mit gleicher Häufigkeit. Es gibt jedoch die Möglichkeit durch unterschiedlich beeinflusste Wachstumsprozesse die Wahrscheinlichkeit einer bevorzugten Richtung deutlich zu erhöhen.

Statt den vier Valenzelektronen des Kohlenstoffatoms, besitzt das Stickstoffatom fünf, von denen drei für die kovalenten Bindungen aufgebracht werden. Zusammen mit den drei Elektronen der benachbarten Kohlenstoffatome und der Fehlstelle bildet sich mit



Abbildung 2.1.: Diamantgitter mit einem Stickstoffatom N (rot) anstelle eines Kohlenstoffatoms (schwarz) mit benachbarter Fehlstelle V (grau) und der Symmetrieachse (blau)

insgesamt fünf Elektronen das neutrale NV-Zentrum, welches mit NV⁰ bezeichnet wird. Im Folgenden ist mit NV-Zentrum, sofern nicht anders angegeben, das negativ geladene NV⁻-Zentrum gemeint. Dies besitzt, verglichen mit dem NV⁰-Zentrum, ein zusätzliches Elektron aus dem Diamantgitter. Die Bindungsenergie des NV-Zentrums von 4,3 eV macht es bis zu einer Temperatur von 1200 °C äußerst stabil [NRL⁺10] und verhindert das Ausbleichen, also den Rückgang des Fluoreszenzsignals bei länger andauernder Bestrahlung.

In künstlich hergestelltem, wie in natürlichem Diamant gibt es bereits, abhängig von der Menge an eingeschlossenem Stickstoff, NV-Zentren. Aufgrund der kurzreichweitigen Kopplungsstärke ist es für die Quanteninformation notwendig zwei oder mehr benachbarte NV-Zentren mit Abständen von wenigen zehn Nanometern vorzufinden. Diese Situation erfordert jedoch eine hohe NV-Zentren-Dichte, welche wiederum mit kürzeren Kohärenzzeiten einhergeht [BNT⁺09]. Grundsätzlich gibt es mehrere Verfahren, um sowohl sehr lange Kohärenzzeiten, als auch zur Quanteninformation verwendbare Anordnungen herzustellen. In allen Methoden werden Stickstoffatome implantiert. Durch Erhitzen des Diamanten auf Temperaturen von 600 bis 800 °C werden die Fehlstel-

len mobil und können zu den Stickstoffatomen wandern, wo sie schließlich das NV-Zentrum bilden. Von der Hochenergieimplantation an Beschleunigern mittels supraleitenden Spulen zur Fokussierung, über die Implantation durch eine Maske, wie zum Beispiel Micafolie, bis hin zur Implantation durch das Loch einer Cantilever an einem Rasterkraftmikroskop werden immer höhere Implantationsgenauigkeiten bei präziserer Festlegung der Implantationsanzahl erzielt. Der bereits in Kapitel 1 erwähnte und in [SLF⁺09, Wei11, Wol12] beschriebene Aufbau verfolgt das Ziel der deterministischen Implantation von NV-Zentren mit einer Auflösung von wenigen Nanometern. Wird dies erreicht, so lassen sich beliebige Arrays von NV-Zentren und Kernspins in einen hochreinen Diamanten einbringen und bei Raumtemperatur als Quantenprozessor, oder Quantenregister nutzen.

2.2.3. Elektrische Zustände

Die Symmetriegruppe der Diamantstruktur mit eingebettetem NV-Zentrum lautet $C_{3\nu}$. Sie gibt die möglichen räumlichen Eigenzustände des NV-Zentrums vor. Räumliche Eigenzustände, die invariant unter jeglichen Symmetrieoperationen sind, werden mit A_1 bezeichnet. Solche, die unter Spiegelung das Vorzeichen wechseln, heißen A_2 . Paare entarteter Eigenzustände E, sind jene, die unter Symmetrieoperationen dieselben Transformationseigenschaften besitzen, wie die \hat{x} - und \hat{y} -Basisvektoren, sofern \hat{z} entlang der NV-Achse gewählt wurde [Tin03]. Zwei der sechs Elektronen des NV-Zentrums sind ungepaart, woraus ein effektiver Spin von S = 1 resultiert. Werden räumliche Anteile und Spinanteile kombiniert, ergibt sich das gesamte Symmetrieverhalten, wie in nachfolgender Abbildung 2.2 vereinfacht dargestellt.

Es ergeben sich ein Triplett-Grundzustand ${}^{3}A_{2}$ und ein angeregter Triplett-Zustand ${}^{3}E$ mit einer Null-Phononen-Linie von $\lambda = 637$ nm [JW06], die jeweils phononische Seitenbänder besitzen. Die Lebensdauer des Fluoreszenzübergangs beträgt in etwa 12 ns [CTJ83]. Zwischen den beiden Zuständen befinden sich zwei metastabile Singulett-Zustände ${}^{1}E$ mit einer Lebensdauer von etwa 220 ns und ${}^{1}A$ mit einer Lebensdauer von nicht ganz 1 ns [AJBB10]. Es gibt weder vom angeregten Triplett-Zustand zu einem der metastabilen Zustände, noch von den metastabilen Zuständen zum Triplett-Grundzustand einen optischen Übergang. Typischerweise induziert der ${}^{3}A_{2}$ -Zustand mit Licht der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm einen Frank-Condon-Übergang von einem Vibrationszustand des angeregten ${}^{3}E$ -Zustands zu seinem Null-Phononen-Level innerhalb von



Abbildung 2.2.: Schema der Energieniveaus des NV⁻-Zentrums ohne externe Felder. Links die Triplett-, rechts die Singulett-Zustände. Dargestellt sind die Anregung in den ³E-Zustand (grün), die Fluoreszenz (rot) und das Intersystem-Crossing (gestrichelt). Die unwahrscheinlichen Übergänge sind blasser gezeichnet.

Femtosekunden. Von dort aus wird ein Fluoreszenzphoton ausgesandt. Unwahrscheinlich, aber möglich ist auch ein Intersystem-Crossing zum ¹A-Zustand. Nach diesem Prinzip kann bei Raumtemperatur das in Abbildung 2.3 gezeigte Fluoreszenzspektrum beobachtet werden.

Der Zustand ${}^{3}A_{2}$ mit |S| = 1 besitzt drei magnetische Unterzustände $m_{\rm s} = 0$ und $m_{\rm s} = \pm 1$. Die Zustände $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0\rangle$ und $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ unterscheiden sich durch die Energiedifferenz (Zero Field Splitting) von $D_{A} = 2,87$ GHz [BCK⁺08]. Auch beim ${}^{3}E$ -Zustand gibt es eine Aufspaltung von $D_{E} = 1,42$ GHz [DDF⁺11] zwischen dem $m_{\rm s} = 0$ und dem $m_{\rm s} = \pm 1$ Zustand. Durch Einstrahlung eines Mikrowellenfelds mit entsprechender Frequenz lassen sich die Spinzustände ineinander überführen. Hier spielen die Unterzustände des ${}^{3}A_{2}$ -Zustands eine bedeutende Rolle. Befindet sich das NV-Zentrum im Zustand $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0\rangle$ und wird mit grünem Licht angeregt, so kehrt es in $m_{\rm s} = 0$ des Grundzustands zurück und Fluoreszenz kann beobachtet werden. Die-



Abbildung 2.3.: Fluoreszenzspektrum aus [Wei11] des NV-Zentrums bei Anregung mit grünem Licht ($\lambda = 532$ nm). Zu sehen sind auch die Null-Phononen-Linien (ZPL's) der beiden Ladungszustände.

ser Übergang ist spinerhaltend. Ist jedoch $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ Ausgangszustand selbiger Anregung, gelangt das NV-Zentrum in den $|{}^{3}E, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ Zustand, woraus mit 30 %iger Wahrscheinlichkeit [BZG⁺08] ein strahlungsfreier Übergang in den metastabilen Zustand ${}^{1}A_{1}$ stattfindet. Von dort geht es durch Aussendung eines Photons im Infrarotbereich mit $\lambda = 1046$ nm in den metastabilen ${}^{1}E$ und schließlich strahlungsfrei in den Zustand $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0\rangle$ über. Bei diesem Übergang geht die gesamte Information über den Spin verloren.

Somit ist es möglich den Zustand $m_{\rm s} = \pm 1$ durch ein Rückgang der Fluoreszenz vom Zustand $m_{\rm s} = 0$ zu unterscheiden, da die beiden Zerfallskanäle durch ihre unterschiedlichen Wahrscheinlichkeiten zu einer Nicht-Boltzmann-Verteilung der Populationen der Zustände $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0\rangle$ und $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ führen. So lässt sich der Spin nach einigen Anregungs- und Emissionszyklen zu 92 % in $m_{\rm s} = 0$ polarisieren [WNH⁺11]. Dieser Sachverhalt prädestiniert das NV-Zentrum für die Quanteninformation, da das Initialisieren, wie auch das Auslesen, als zwei essentielle Bestandteile, möglich sind. Eine Methode, sich dies zunutze zu machen, ist ein ODMR-Setup (optische Detektion magnetischer Resonanz), welches in Kapitel 2.4.1 genauer beschrieben wird. Mit einem solchen Aufbau, kann der Spin mit Mikrowellenstrahlung manipuliert und dessen Zustand optisch ausgelesen und initialisiert werden.

Der Gesamthamiltonoperator des NV-Zentrums im Grundzustand ${}^{3}A_{2}$ ohne den Einfluss äußerer Felder wird durch die Null-Feld-Aufspaltung des Elektronenspins und die Hyperfeinwechselwirkung mit benachbarten Kernspins beschrieben:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\rm ZFS} + \hat{H}_{\rm HFS} \tag{2.6}$$

Wird die Spin-Quantisierung m_s entlang der z-Achse, also der Hauptsymmetrieachse des NV-Zentrums gewählt, lautet der Hamiltonoperator der Spin-Spin-Wechselwirkung der Elektronen [Jah12]:

$$\hat{H}_{\rm ZFS} = \hat{S}\bar{D}\hat{S} = D_x\hat{S}_x^2 + D_y\hat{S}_y^2 + D_z\hat{S}_z^2$$
(2.7)

$$= D\left[\hat{S}_{z}^{2} - \frac{1}{3}\hat{S}\left(\hat{S} + 1\right)\right] + E\left(\hat{S}_{x}^{2} - \hat{S}_{y}^{2}\right)$$
(2.8)

 \hat{S} repräsentiert den Gesamtspin der Elektronen und $\hat{S}_{x,y,z}$ die Spinoperatoren für ein System mit S = 1 in der Basis \hat{z} . Bei \bar{D} handelt es sich um den Null-Feld-Aufspaltung-Tensor (Zero Field Splitting, ZFS). Für ihn muss $Tr(\bar{D}) = 0$, sowie aufgrund der Symmetrie $D_x \neq D_y$ und $D_z \neq D_{x,y}$ gelten. Damit kann $D = \frac{3D_z}{2}$ und $E = \frac{D_x - D_y}{2}$ gewählt werden, sodass sich Gleichung 2.7 in 2.8 umschreiben lässt. Existiert kein transversales kristallines Spannungsfeld, ist verglichen mit $D = D_A = 2,87$ GHz $E \approx 0$ und kann vernachlässigt werden.

Da es nur im angeregten Zustand ${}^{3}E$ und nur bei Temperaturen deutlich über Raumtemperatur zu einer Spin-Orbit-Wechselwirkung kommt, die Einfluss auf die Übergänge zu den metastabilen Zuständen hat, kann bei dieser Betrachtung des Grundzustands ${}^{3}A_{2}$ die Feinstruktur vernachlässigt werden [Beh12].

Zur Hyperfeinwechselwirkung tragen sowohl der Kernspin \hat{I}_N des Stickstoffatoms des NV-Zentrums, als auch die *j* Elektronen- und Kernspins \hat{I}_j der umgebenden Verunreinigungen bei. Sind \bar{A}_N und \bar{A}_j die Hyperfeinwechselwirkungstensoren des Stickstoffatoms und des Spinbads sowie \bar{Q}_N der Quadrupolwechselwirkungstensor für *k* Kernspins mit $I > \frac{1}{2}$, so ergibt sich folgender Hamiltonoperator:

$$\hat{H}_{\rm HFS} = \hat{S}\bar{A}_{\rm N}\hat{I}_{\rm N} + \sum_j \hat{S}\bar{A}_j\hat{I}_j + \sum_k \hat{I}_k\bar{Q}_k\hat{I}_k$$
(2.9)

Wie in [Neu11] beschrieben, beinhalten die beiden ersten Terme die isotrope Fermi-Kontakt-Wechselwirkung, die proportional zur Elektronenspin-Dichte am Ort des Kerns ist und die verglichen mit der Fermi-Kontakt-Wechselwirkung langreichweitigere Dipol-Dipol-Wechselwirkung des Kernspins mit dem Elektronenspin des NV-Zentrums. Der dritte Term beschreibt die Quadrupol-Aufspaltung und ist nur für ¹⁴N relevant, wofür sich $Q_{14N} = -4,9$ MHz ergibt. Im Eigensystem des Hyperfeinwechselwirkungstensors gilt $\bar{A} = diag (A_{\perp}, A_{\perp}, A_{\parallel})$, sodass sich mit $a_{iso} = \frac{A_{\parallel} + 2A_{\perp}}{3}$ folgender Hamiltonoperator aus Gleichung 2.9 ergibt:

$$\hat{H}_{\rm HFS} = a_{\rm iso}\hat{S}\hat{I} + \mu_0 \gamma_{\rm e} g_{\rm n} \mu_{\rm n} \frac{\hat{S}\hat{I} - 3\left(\hat{S}e_r\right)\left(e_r\hat{I}\right)}{2r^3} + Q\hat{I}_z^2$$
(2.10)

Bei μ_0 handelt es sich um die magnetische Feldkonstante. Der *g*-Faktor des Elektronenspins lautet $g_e \approx 2$ und g_n ist der *g*-Faktor des jeweiligen Kernspins. Mit μ_B als Bohrsches Magneton und dem Plankschen Wirkungsquantum h ergibt sich weiter das gyromagnetische Verhältnis des Elektrons zu $\gamma_e = \frac{g_e \mu_B}{h} \approx 2.8 \frac{\text{MHz}}{\text{Gaub}}$. Es gilt in guter Näherung $\gamma_{\text{NV}} \approx \gamma_e$. Bei e_r handelt es sich um den Einheitsvektor in Richtung des Kerns mit \hat{I} und bei r um dessen Abstand zum NV-Zentrum.

Das natürliche Vorkommen von $^{14}\mathrm{N}$ in Diamant mit über 99,5 % verringert die Wahrscheinlichkeit ¹⁵N als Teil des NV-Zentrums vorzufinden. Dennoch können die zwei einfachsten Fälle der Hyperfeinwechselwirkung unterschieden werden. ¹⁴N hat einen Kernspin von I = 1 und somit spaltet A_{\parallel} den Übergang $|m_{\rm s} = 0\rangle \leftrightarrow |m_{\rm s} = +1\rangle$ in drei Übergänge $(|m_{\rm s}=0,m_{\rm I}=\pm\frac{1}{2}) \leftrightarrow |m_{\rm s}=+1,m_{\rm I}=-\frac{1}{2}\rangle, |m_{\rm s}=0,m_{\rm I}=\pm\frac{1}{2}\rangle \leftrightarrow$ $|m_{\rm s} = +1, m_{\rm I} = \pm 1\rangle$ und $|m_{\rm s} = 0, m_{\rm I} = \pm \frac{1}{2}\rangle \iff |m_{\rm s} = +1, m_{\rm I} = \pm 1\rangle$ mit einer Energiedifferenz von 2,2 MHz. ¹⁵N hat hingegen einen Kernspin von $I = \frac{1}{2}$ und A_{\parallel} spaltet den Übergange $|m_{\rm s}=0\rangle ~~\leftrightarrow~~ |m_{\rm s}=+1\rangle$ in zwei Übergänge ($|m_{\rm s}=0,m_{\rm I}=$ $\pm \frac{1}{2} \rangle \leftrightarrow |m_{\rm s} = +1, m_{\rm I} = -\frac{1}{2} \rangle$ und $|m_{\rm s} = 0, m_{\rm I} = \pm \frac{1}{2} \rangle \leftrightarrow |m_{\rm s} = +1, m_{\rm I} = +\frac{1}{2} \rangle$ mit einer Energiedifferenz von 3,1 MHz [RRT $^+06$]. A_{\perp} induziert hingegen, abhängig von der Magnetfeldstärke, Flip-Flops zwischen Kern- und Elektronenspin. Somit kann bei der Herstellung von Diamant und der enthaltenen NV-Zentren nur die unterschiedliche Stärke des Spinbads berücksichtigt werden, die sich erheblich auf die Dekohärenz der Elektronenspinzustände auswirkt. Aus diesem Grund sind hochreine Diamanten die erste Wahl, um in ihnen implantierte NV-Zentren für die Quanteninformation nutzbar zu machen.

Es sei noch angemerkt, dass es gebräuchlich ist, die Energieniveaus beziehungsweise

deren Differenzen in der Einheit einer Frequenz anzugeben. Dies ist im praktischen Gebrauch durchaus sinnvoll und unterscheidet sich lediglich durch das Planksche Wirkungsquantum von der eigentlich beschriebenen Größe.

2.2.4. Das NV-Zentrum in äußeren Feldern

Die Wirkung elektromagnetischer Felder kann im Zusammenhang mit NV-Zentren in die der Spannungsfelder des Kristalls, den Stark-Effekt für elektrische und den Zeeman-Effekt für magnetische Felder gegliedert werden. Ersteres wurde bereits in Gleichung 2.8 berücksichtigt. Die Anwesenheit transversaler elektrischer Felder sowie transversaler Spannungsfelder führen zu $E \neq 0$. Durch die gezielte Ausnutzung dieser Felder können Nanodiamanten theoretisch dazu genutzt werden, magnetische Felder von zum Beispiel einzelnen Kernspins zu detektieren, oder mit einer äußerst präzisen räumlichen Auflösung Magnetfelder zu vermessen [TCC⁺08].

Der Vollständigkeit halber wird der Hamiltonoperator des Stark-Effekts in Abhängigkeit von der Orientierung zur Symmetrieachse des NV-Zentrums angegeben [Dol10]:

$$\hat{H}_{\rm E} = R_{3D}E_z \left[\hat{S}_z^2 - \frac{1}{3}\hat{S}\left(\hat{S} + 1\right) \right] - R_{2E} \left[E_x \left(\hat{S}_x \hat{S}_y + \hat{S}_y \hat{S}_x \right) + E_y \left(\hat{S}_x^2 - \hat{S}_y^2 \right) \right] + R_{15} \left[E_x \left(\hat{S}_x \hat{S}_z + \hat{S}_z \hat{S}_x \right) + E_y \left(\hat{S}_y \hat{S}_z + \hat{S}_z \hat{S}_y \right) \right]$$
(2.11)

Die Werte der Vorfaktoren können ebenfalls [Dol10] entnommen werden. Da in dieser Arbeit keine elektrischen Felder verwendet wurden, ist dies jedoch nicht weiter von Belang. Von ganz entscheidender Bedeutung ist jedoch die Wechselwirkung des Magnetfelds mit dem Elektronenspin, beschrieben durch den Zeeman-Effekt. Auch die Kernspins des ¹⁴N, des ¹⁵N und des ¹³C interagieren mit dem magnetischen Feld, was der nukleare Zeeman-Effekt ausdrückt. Zusammengefasst ergibt das folgenden Hamiltonoperator:

$$\hat{H}_{\rm B} = \hat{H}_{\rm e,Zeeman} + \hat{H}_{\rm n,Zeeman}$$
 (2.12)

$$= \gamma_{\rm e} B \hat{S} + \gamma_{\rm n} B \hat{I}_{\rm n} \tag{2.13}$$

Im Allgemeinen wird mit schwachen Magnetfeldern im Bereich $\gamma_{e}B \ll D$ gearbeitet. Das Magnetfeld kann in zwei Komponenten, eine zum NV-Zentrum parallele und eine orthogonale Komponente, geteilt werden: $B = B_{\parallel} + B_{\perp}$. Die Komponente $B_{\parallel} = B_{z}$ spaltet den Übergang $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0 \rangle \leftrightarrow |{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1 \rangle$ in die zwei Übergänge $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0 \rangle \leftrightarrow |{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 1 \rangle$ und $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = 0 \rangle \leftrightarrow |{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = -1 \rangle$ auf. Die orthogonale Komponente hingegen sorgt für eine Mischung der Zustände, was zu einem Rückgang der beobachteten Fluoreszenz führt [EMKA05]. Aus diesem Grund muss für größere Magnetfelder die Orientierung des Magnetfelds zur NV-Achse penibel berücksichtigt werden. Bei schwachen Feldern kann davon abgesehen werden, da hier die Null-Feld-Aufspaltung und der Zeeman-Effekt mit $B = B_{\parallel}$ dominiert. Somit kann Gleichung 2.13 für kleine Magnetfelder die Valler umgeformt werden zu:

$$\hat{H}_{\rm B} = B_z \left(\gamma_{\rm e} \hat{S}_z + \gamma_{N/C} \hat{I}_{N/C,z} \right)$$
(2.14)

Das gyromagnetische Verhältnis des Elektrons $\gamma_{\rm e}$ wurde bereits in Gleichung 2.10 verwendet. Hinzu kommen die gyromagnetischen Verhältnisse $\gamma_{\rm C} = g_{\rm C}\mu_{\rm n} = 1,06 \frac{\rm kHz}{\rm Gau \beta}$ des ¹³C-Kerns, $\gamma_{^{15}\rm N} = g_{^{15}\rm N}\mu_{\rm n} = -0,43 \frac{\rm kHz}{\rm Gau \beta}$ des ¹⁵N-Kerns und $\gamma_{^{14}\rm N} = g_{^{14}\rm N}\mu_{\rm n} = 0,31 \frac{\rm kHz}{\rm Gau \beta}$ des ¹⁴N-Kerns [SMN14].

All diese Eigenschaften qualifizieren NV-Zentren in Diamant für die gezielte Manipulation mit Mikrowellen und präzise Zustandsdetektion durch Fluoreszenzmikroskopie. Es wird die Nutzung als Qubit, in Arrays sogar als Quantenprozessor und die Verwendung als äußerst sensibler Magnetfeldsensor ermöglicht. Auch bei der Übertragung einer Information auf den Kernspin, dessen Zustand deutlich längere Kohärenzzeiten als der des NV-Zentrums aufweisen kann, ist das Farbzentrum das ideale Werkzeug.

2.3. Konfokale Fluoreszenzmikroskopie

Das vorherige Kapitel beschrieb die wichtigsten Eigenschaften des NV-Zentrums. In Kapitel 2.2.3 wurde insbesondere die Möglichkeit der Zustandsauslese angesprochen. Ein Verfahren, mit dem diese Auslese technisch umgesetzt werden kann, ist die Fluoreszenzmikroskopie. Sie benötigt einen fluoreszierenden Farbstoff oder ein Farbzentrum, hier das NV-Zentrum, das ein Photon einer gewissen Wellenlänge λ_{ab} absorbiert und anschließend unter spontaner Emission ein Photon mit λ_{em} aussendet. Es ist zudem wichtig, dass sich der anregende, vom emittierenden Strahl optisch trennen lässt, um nur die Fluoreszenz des Farbstoffs detektieren zu können. Bei Betrachtung des Emissionsspektrums in Abbildung 2.3 ist zu sehen, dass die Stokes-Verschiebung im Fall des NV-Zentrums als Farbzentrum sicherstellt, dass $\lambda_{ab} < \lambda_{em}$ gilt. Technisch geschieht die Trennung beider Wellenlängen, wie in Abbildung 2.4 zu sehen, durch einen dichroischen Spiegel und einen Filter vor dem Detektor.



Abbildung 2.4.: oben: Laser mit anregender Wellenlänge (grün), links: Fluoreszenz (gelb) eines Farbstoffs mit Stokes-Verschiebung. Mitte: Strahlentrennung eines Fluoreszenzmikroskops: Der dichroische Spiegel hat idealerweise einen hohen Transmissionsgrad für das zu detektierenden Spektrum, reflektiert jedoch die anregende Wellenlänge vollständig. Der Filter vor dem Detektor (rechts) verhindert, dass Restlicht der Anregungswellenlänge, welches von der Probe und dem Spiegel reflektiert wird, zum Detektor gelangt. rechts: Detektionsarm eines Konfokalmikroskops: Die Lochblende in der Fokalebene der Linsen blendet Signale aus Schichten, die vor (schwarz gestrichelt) beziehungsweise hinter (hellblau gestrichelt) der Fokusebene des Objektivs liegen aus.

Solch ein Mikroskop ist nach Ernst K. Abbe in seiner Auflösung beugungsbegrenzt, sodass zwei Objekte nach dem Rayleigh-Kriterium einen maximalen lateralen Abstand Δx und maximalen axialen Abstand Δz aufweisen müssen, um noch als zwei getrennte Objekte aufgelöst werden zu können. So sind zum Beispiel zwei Farbzentren noch getrennt auflösbar, falls die Fluoreszenzintensität zwischen ihnen um mindestens 26 % abfällt. Da es eines sehr hohen Aufwands bedarf, genug Farbzentren zu finden, deren verschiedene Abstände um den Bereich der Auflösung streuen, kann laut [Wol12] auch am einzelnen NV-Zentrum die Auflösung bestimmt werden. Die Abbe'sche Auflösungsgrenze, auch Abbe-Limit genannt, liegt bei Verwendung eines Objektivs und eines Kondensators mit gleicher numerischer Apertur $NA = n \sin \alpha$, sprich gleichem Produkt aus Brechungsindex n für die verwendete Wellenlänge λ und Sinus des halben Öffnungswinkels α laut [Abb73, WGGH] bei

$$\Delta x = \frac{\lambda}{2NA} \quad \text{und} \tag{2.15}$$

$$\Delta z = \frac{2n\lambda}{NA^2}.$$
(2.16)

Die Konfokalmikroskopie kann diese Grenze mit vergleichbar geringem Aufwand herabsetzen. Ein Fluoreszenzmikroskop vereint mit einem konfokalen Mikroskop kann zu einer Auflösungs- und Kontrastverbesserung führen. Ein solcher Aufbau, wie in Abbildung 2.4 zu sehen, lässt unter perfekten Bedingungen laterale und axiale Auflösungen von

$$\Delta x = \frac{0,44\,\bar{\lambda}}{NA} \quad \text{und} \tag{2.17}$$

$$\Delta z = \frac{0,76\,\lambda}{n - \sqrt{n^2 - NA^2}} \tag{2.18}$$

zu [WGGH]. Mit $\bar{\lambda} = \frac{\sqrt{2} \lambda_{em} \lambda_{ab}}{\sqrt{\lambda_{em}^2 + \lambda_{ab}^2}}$ wurde bereits die Stokes-Verschiebung bei der Auflösungsgrenze berücksichtigt. Des Weiteren wurde die Halbwertsbreite der *Punktspreizfunktion*, welche die Abbildung einer idealen punktförmigen Quelle durch ein optisches System beschreibt, nach [Wol12] in die Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium umgerechnet. Für die Arbeit mit NV-Zentren stellt dies einen erheblichen Vorteil gegenüber der reinen Fluoreszenzmikroskopie dar. Eine Verbesserung der Auflösung lässt eine schnellere Suche einzelner NV-Zentren und die effektivere Initialisierung des Grundzustands eben dieser zu. Zudem führt ein erhöhter Kontrast zu einer besseren Zustandsauslese.

2.4. Manipulation von NV-Zentren

Das vorherige Kapitel zeigt eine mögliche technische Umsetzung der Anregung sowie Detektion der Fluoreszenz von Farbzentren auf. Nun sollen die NV-Zentren nicht nur mikroskopiert, sondern auch deren Zustand charakterisiert und manipuliert werden können. Ein passendes Verfahren wird zusammen mit einigen Charakterisierungsmöglichkeiten im Folgenden erläutert.

2.4.1. ODMR

Die optische Detektion magnetischer Resonanz (ODMR) ist eine Kombination der Elektronen Spin Resonanz (ESR) mit der optischen Auslese der Zustandsänderung. Bei der ESR wird normalerweise die Probe einer konstanten Mikrowellenfrequenz ausgesetzt und das Magnetfeld verändert. Diese Methode findet vielfache Anwendung im Studium chemischer Reaktionen, wie auch in der Biophysik und der Materialforschung. In dieser Arbeit wird der Diamant mit den beinhalteten NV-Zentren in ein statisches Magnetfeld eingebracht, sodass die entarteten Zustände der spinabhängigen magnetischen Momente aufspalten. Als Zeeman-Aufspaltung ergibt sich bei entsprechender Ausrichtung des Magnetfelds ($B = B_z$), wie bereits in Kapitel 2.2.4 beschrieben:

$$E_{\text{Zeeman}} = g_e \mu_{\text{B}} B m \tag{2.19}$$

Die erlaubten Übergänge mit $m = \pm 1$ besitzen die Energiedifferenz:

$$\Delta E_{\text{Zeeman}} = g_{\text{e}} \mu_{\text{B}} B \tag{2.20}$$

Wird nun die Probe mit Mikrowelle der Resonanzfrequenz von

$$\omega_0 = \gamma_{\rm e} B_{\rm ges} \tag{2.21}$$

bestrahlt, führt dies zur Absorption, die gemessen werden kann. Im Fall der NV-Zentren wird jedoch nicht direkt das Absorptionsspektrum, wie in der ESR üblich, sondern die Fluoreszenzintensität detektiert. Das macht die optisch detektierte ESR, also die ODMR 10⁷-mal empfindlicher als die herkömmliche ESR-Spektroskopie [NKJ⁺05]. Auch wird die Mikrowellenfrequenz, statt des Magnetfelds verändert. Die Resonanzfrequenz des Zustands $|{}^{3}A_{2}, m_{s} = \pm 1\rangle$ ergibt sich aus

$$B_{\rm ges} = B_{\rm ZFS} \pm B. \tag{2.22}$$

Die Null-Feld-Aufspaltung liegt bei $B_{\rm ZFS} \approx 1028$ Gauß. Ohne externes Magnetfeld, B = 0 entspricht dies einer Resonanzfrequenz von $\omega_0 = 2,87$ GHz. Durch die Breite der Aufspaltung des Zustands $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ und deren Versatz zur Null-Feld-Aufspaltung lassen sich nach [SPM⁺10] direkt die magnetische Flussdichte und der Winkel des Magnetfelds zur NV-Achse bestimmen. Ohne Spannungsfeld folgt eine magnetische Flussdichte von

$$B = \frac{10}{\gamma_{\rm e}} \sqrt{\frac{P}{3}}, \quad [B] = 1 \text{ Gauß.}$$
 (2.23)

Der Winkel θ ergibt sich aus:

$$\theta = \arccos\sqrt{\frac{2D_A^3 + 3D_A P + Q}{9D P}} \tag{2.24}$$

Hier sind P und Q durch

$$P = \omega_1^2 - \omega_1 \omega_2 + \omega_2^2 - D_A^2 \text{ und}$$
 (2.25)

$$Q = (\omega_1 + \omega_2) \left(2\omega_1^2 - 5\omega_1\omega_2 + 2\omega_2^2 \right)$$
 (2.26)

zu ersetzen.

Konkret wird bei einer ODMR-Messung das NV-Zentrum kontinuierlich (continuous wave, cw) mit dem grünen Laser beleuchtet und damit in den $m_{\rm s} = 0$ Zustand polarisiert. Gleichzeitig wird cw die Mikrowelle eingestrahlt und ein gewisser Frequenzbereich gescannt. Währenddessen wird die Fluoreszenz des NV-Zentrums detektiert. Wird die Mikrowelle resonant mit einem der Übergänge, so ist leistungsabhängig ein Rückgang der Fluoreszenz von bis zu 30% zu beobachten. Die Auflösung der Linienbreite beim cw-ODMR erlaubt ohne Magnetfeld meist nur die Null-Feld-Aufspaltung und mit Magnetfeld die Zeeman-Aufspaltung des $m_{\rm s} = \pm 1$ Zustands zu beobachten. Für eine höhere Auflösung ist ein extrem sensibles ODMR oder die deterministische Präparation der Zustände erforderlich. Das gepulste ODMR kann eine solch höhere Auflösung realisieren, sodass auch die in Kapitel 2.2.3 angesprochene Unterscheidung zwischen ¹⁴N und ¹⁵N möglich wird. Diese Methode bedient sich im Fall wechselwirkender Elektron-Elektron-Resonanz (DEER), kann jedoch genauso bei der Kopplung des Elektronenspins mit dem des Kerns angewandt werden.

2.4.2. Rabioszillation

Ohne Mikrowellenfeld existieren in Anwesenheit eines statischen magnetischen Felds drei Unterzustände des Triplett-Grundzustands. Wird der $m_{\rm s} = +1$, oder wahlweise der $m_{\rm s} = -1$ Zustand vernachlässigt, kann der ${}^{3}A_{2}$ Zustand, wie in Abbildung 2.5 verdeutlicht, als ein Zwei-Niveau System interpretiert werden.



Abbildung 2.5.: ${}^{3}A_{2}$ Zustand des NV-Zentrums und Aufhebung der Entartung des $m_{\rm s} = \pm 1$ Zustands durch passendes Magnetfeld. Wahl des Zwei-Niveau-Systems mit den Zuständen $m_{\rm s} = 0$ als Grundzustand $|{\rm g}\rangle$ und $m_{\rm s} = -1$ als angeregter Zustand $|{\rm e}\rangle$ des Qubits. Rabioszillation mit der Frequenz Ω (blau), getrieben durch die Mikrowellenfrequenz $\omega_{\rm MW}$, die um δ von der Resonanzfrequenz ω_{eg} des Übergangs verstimmt ist.

Das Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung (Gleichung 2.27) unter Berücksichtigung monochromatischer Mikrowellenstrahlung führt zum besseren Verständnis der Dynamik des Spins.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = \hat{H} |\Psi(t)\rangle$$
 (2.27)

Die Superposition der beiden Zustände

$$|\Psi(t)\rangle = c_g(t)|g\rangle + c_e(t)|e\rangle \qquad (2.28)$$

wird durch ihre zeitabhängigen Amplituden $c_g(t)$ und $c_e(t)$ bestimmt. Der Hamiltonoperator ist durch

$$\ddot{H} = \ddot{H}_0 + \ddot{H}_{\rm MW} \tag{2.29}$$

gegeben. $\hat{H}_0 = \hbar \omega_{eg} |e\rangle \langle e|$ beschreibt das ungestörte System mit der Energiedifferenz

von $\hbar\omega_{eg}$ zwischen dem Grundzustand $|g\rangle$ und dem angeregten Zustand $|e\rangle$. Im Fall des NV-Zentrums wird der Übergang von der orthogonal zur Quantisierungsachse des NV-Zentrums liegenden Komponente $B_{\perp}(\vec{r},t)$ der zeitlich oszillierenden magnetischen Flussdichte $\vec{B} = B_{\perp}(\vec{r},t)\vec{e}_{\perp} + B_{\parallel}(\vec{r},t)\vec{e}_{\parallel}$ getrieben. Wie bereits erwähnt, ist die parallele Komponente $B_{\parallel}(\vec{r},t) = B_z$ für Aufhebung der Entartung des $m_s = \pm 1$ Niveaus verantwortlich und wird im Folgenden nicht weiter in die Betrachtung einfließen. Für die magnetische Flussdichte $\vec{B} = B_{\perp}(\vec{r},t)\vec{e}_{\perp}$ gilt somit am Ort \vec{R} des NV-Zentrums die magnetische Dipolnäherung $\vec{B}(\vec{R},t) \sim \vec{B}(t)$. Sie lässt sich schreiben als:

$$\vec{B}(t) = \vec{b}B_0 \cos(\omega_{\rm MW} t) \tag{2.30}$$

Hierbei ist $\vec{b} = \vec{e}_{\perp}$ der auf Eins normierte Polarisationsvektor, B_0 die Amplitude und ω_{MW} die Frequenz der Mikrowelle. Damit kann der gesamte Hamiltonoperator aus Gleichung 2.29 beschrieben werden als:

$$\hat{H} = \hbar \omega_{eg} |e\rangle \langle e| - \hat{\vec{\mu}} \vec{B}(t)$$
(2.31)

Bei $\hat{\vec{\mu}} = -\mu_{\rm B}(\hat{\vec{l}} + g_{\rm e}\hat{\vec{S}})$ handelt es sich um den magnetischen Dipoloperator. Ohne Beachtung der Allgemeinheit wird $\hat{\vec{l}} = 0$ gesetzt, da nur die Wechselwirkung des Spins mit der Mikrowelle betrachtet werden soll. Definiert man weiterhin die resonante Rabifrequenz

$$\Omega_0 = \frac{\mu B_0}{\hbar}, \qquad (2.32)$$

so lässt sie sich mit $\tilde{\gamma}_{e} = \frac{g_{e}\mu_{B}}{\hbar}$ und dem Übergangsmatrixelement $\mu = \mu_{ge}^{\vec{b}} = \langle g | \hat{\vec{\mu}} | e \rangle \vec{b}$ bestimmen zu

$$\Omega_0 = \tilde{\gamma}_{\rm e} B_0. \tag{2.33}$$

Damit ist die Rabifrequenz proportional zur Amplitude der magnetischen Flussdichte. Dies führt schließlich in der Rotating Wave Approximation (RWA) und mit der Eulerformel $\cos(\omega_{MW}t) = \frac{1}{2} \left(e^{i\omega_{MW}t} + e^{-i\omega_{MW}t}\right)$ zu folgendem Wechselwirkungsoperator:

$$\hat{H}_{\rm MW} = \hbar \omega_{eg} |e\rangle \langle e| + \frac{\hbar \Omega_0}{2} \left(e^{i\omega_{\rm MW}t} |g\rangle \langle e| + e^{-i\omega_{\rm MW}t} |e\rangle \langle g| \right)$$
(2.34)

Durch Einsetzen der Gleichungen 2.28 und 2.34 in die zeitabhängige Schrödingerglei-

chung, ergibt sich nach Koeffizientenvergleich die gekoppelten Differentialgleichungen:

$$\dot{c}_g(t) = -i\frac{\Omega_0}{2} e^{i\omega_{\rm MW}t} c_e(t)$$
(2.35)

$$\dot{c}_e(t) = -i\left(\omega_{eg}c_e(t) + \frac{\Omega_0}{2}e^{i\omega_{MW}t}c_g(t)\right)$$
(2.36)

Der Wechsel in das Dirac-Bild mit $|\tilde{\Psi}(t)\rangle = e^{i\frac{\hat{H}_0}{\hbar}t}|\Psi(t)\rangle$ eliminiert den ersten Term in 2.36 und es ergeben sich die neuen Amplituden der Eigenfunktionen $\tilde{c}_g = c_g$ und $\tilde{c}_e = e^{i\omega_{eg}}c_e$. Eine weitere Transformation ins rotierende Bezugssystem der Mikrowelle mit $\tilde{c}_g(t) = -e^{-i\frac{\delta}{2}t}\tilde{c}_g(t)$, $\tilde{c}_e(t) = -e^{i\frac{\delta}{2}t}\tilde{c}_e(t)$ und der Verstimmung $\delta = \omega_{\rm MW} - \omega_{eg}$ führt zu den gekoppelten Differentialgleichungen:

$$\dot{\tilde{c}}_g(t) = \frac{\mathrm{i}}{2} \left(\Omega_0 \tilde{\tilde{c}}_e - \delta \tilde{\tilde{c}}_g \right)$$
(2.37)

$$\dot{\tilde{\tilde{c}}}_{e}(t) = \frac{\mathrm{i}}{2} \left(\Omega_0 \tilde{\tilde{c}}_g + \delta \tilde{\tilde{c}}_e \right)$$
(2.38)

Mit der verallgemeinerten Rabifrequenz

$$\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2} \tag{2.39}$$

folgen aus der Lösung der Gleichungen 2.37 und 2.38 die Rabi-Gleichungen:

$$|\tilde{\tilde{c}}_{g}(t)|^{2} = 1 - |\tilde{\tilde{c}}_{e}(t)|^{2}$$
(2.40)

$$|\tilde{\tilde{c}}_{e}(t)|^{2} = \frac{\Omega_{0}^{2}}{2\Omega^{2}} \left(1 - \cos(\Omega t)\right)$$
(2.41)

Eine Erhöhung der Mikrowellenamplitude führt somit nicht zu einer Erhöhung der Besetzungswahrscheinlichkeit, sondern lässt das System schneller zwischen Grund- und angeregtem Zustand oszillieren. Bei resonanter Mikrowelleneinstrahlung geschieht dies, wie in Abbildung 2.6 zu sehen, mit Ω_0 . Wird die Einstrahlung jedoch nicht-resonant, erhöht sich die Rabifrequenz auf Ω und die Amplitude ist nicht mehr komplett durchmoduliert.



Abbildung 2.6.: Rabioszillation zwischen Grundzustand $|g\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ ohne Verstimmung (rot). Eine Verstimmung (blau und schwarz) senkt die Amplitude und erhöht die Rabifrequenz

2.4.3. Dichtematrix-Formalismus und Optische Bloch-Gleichungen

Da die Schrödingergleichung, die zur Beschreibung der Rabioszillation eines Zwei-Niveau-Systems herangezogen wird, nur die Entwicklung reiner Zustände erlaubt, kann sie keine spontane Emission berücksichtigen. Um dennoch inkohärente Überlagerungen und deren zeitliche Evolution zu beschreiben, wird der Dichtematrix-Formalismus herangezogen. Mit seiner Hilfe lassen sich die Optischen Bloch-Gleichungen aufstellen und in eine anschauliche Darstellung mit dem Bloch-Vektor überführen. Auf der Bloch-Kugel, als Menge aller möglichen Bloch-Vektoren lassen sich schließlich gut Spin-Dynamiken visualisieren.

Der statische Dichtematrix-Operator für ein Zwei-Niveau-System ist gegeben durch:

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \rho_{gg}(t) & \rho_{ge}(t) \\ \rho_{eg}(t) & \rho_{ee}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_g(t)d_g^*(t) & d_g(t)d_e^*(t) \\ d_e(t)d_g^*(t) & d_e(t)d_e^*(t) \end{pmatrix}$$
(2.42)

Hier entsprechen die Komponenten $d_i(t)$ den Koeffizienten $\tilde{c}_i(t)$ für i = g, e aus Kapi-

tel 2.4.2 und $d_i^*(t)$ ihren komplex konjugierten. Die Hauptdiagonalelemente beschreiben dabei die Population des jeweiligen Zustands, die Nebendiagonalelemente die Kohärenzen. Es existieren mehrere Relaxationsprozesse, die in Kapitel 2.4.4 genauer beschrieben werden. Dazu gehören die longitudinalen Relaxationsrate $\gamma = \frac{1}{T_1}$ und die transversalen Relaxationsrate $\gamma' = \frac{1}{T_2}$. Vereinfacht beschrieben, führen sie zu einer Dämpfung der Population mit der Rate γ und einem Rückgang der Kohärenzen mit der Rate γ' . Dies kann durch einen Zusatzterm beschrieben werden, für den gilt:

$$\dot{\rho}^{\text{relax}}(t) = \begin{pmatrix} \gamma \rho_{ee}(t) & -\gamma' \rho_{ge}(t) \\ -\gamma' \rho_{eg}(t) & -\gamma \rho_{ee}(t) \end{pmatrix}$$
(2.43)

In diesem Formalismus lautet die zeitliche Entwicklung des Hamiltonoperators aus 2.29 unter Berücksichtigung der Relaxation:

$$i\hbar \frac{\mathrm{d}\hat{\rho}(t)}{\mathrm{d}t} = -\left[\hat{H}_0 + \hat{H}_{\mathrm{MW}}, \rho(t)\right] + \frac{\mathrm{d}\hat{\rho}^{\mathrm{relax}}(t)}{\mathrm{d}t}$$
(2.44)

Daraus ergeben sich die optischen Bloch-Gleichungen

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{gg}(t) = \gamma \rho_{ee}(t) + \mathrm{i}\frac{\Omega_0}{2} \left(\tilde{\rho}_{eg}(t) - \tilde{\rho}_{ge}(t)\right)$$
(2.45)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\rho_{ee}(t) = -\gamma\rho_{ee}(t) + \mathrm{i}\frac{\Omega_0}{2}\left(\tilde{\rho}_{ge}(t) - \tilde{\rho}_{eg}(t)\right)$$
(2.46)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\tilde{\rho}_{ge}(t) = -\left(\gamma' + \mathrm{i}\delta\right)\tilde{\rho}_{ge}(t) + \mathrm{i}\frac{\Omega_0}{2}\left(\rho_{ee}(t) - \rho_{gg}(t)\right)$$
(2.47)

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\tilde{\rho}_{eg}(t) = -\left(\gamma' - \mathrm{i}\delta\right)\tilde{\rho}_{eg}(t) + \mathrm{i}\frac{\Omega_0}{2}\left(\rho_{gg}(t) - \rho_{ee}(t)\right)$$
(2.48)

mit den neuen Dichtematrixkoeffizienten $\tilde{\rho}_{ge} = e^{-i\delta t}\rho_{ge}$ und $\tilde{\rho}_{eg} = \tilde{\rho}_{ge}^*$. Für $\delta \neq 0$ lassen sich diese Gleichungen nur nummerisch lösen. Wird der Grenzfall $\gamma' = \frac{\gamma}{2}$, also $T_2 = 2T_1$ und eine resonante Anregung eines Systems mit den Anfangsbedingungen $\rho_{ee}(t) = 0$ und $\tilde{\rho}_{ge}(t) = 0$ betrachtet, ergibt sich nach [HS10] die Population des angeregten Zustands:

$$|\tilde{\tilde{c}}_e(t)|^2 = \frac{\Omega_0^2}{2\Omega_0^2 + \gamma^2} \left(1 - \left(\cos\left(\tilde{\Omega}t\right) + \frac{3\gamma}{4\tilde{\Omega}}\sin\left(\tilde{\Omega}t\right) \right) e^{-\frac{3\gamma t}{4}} \right)$$
(2.49)

mit der neuen Frequenz $\tilde{\Omega} = \sqrt{\Omega_0^2 + \frac{\gamma^2}{8}}$. Diese Oszillation wird in 2.7 noch einmal mit unterschiedlich starker Dämpfung veranschaulicht.


Abbildung 2.7.: Rabioszillation mit schwacher (rot) und starker (blau) Dämpfung

Definiert man den Bloch-Vektor:

$$\begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{\rho}_{ge} + \tilde{\rho}_{eg} \\ i \left(\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge} \right) \\ \rho_{ee} - \rho_{gg} \end{pmatrix}$$
(2.50)

erhält man nach [Mes08] folgende Darstellung der optischen Bloch-Gleichungen:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t} \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \Omega_0 \\ 0 \\ \delta \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \gamma' u \\ \gamma' v \\ \gamma(w+1) \end{pmatrix}$$
(2.51)

Hier ist u die dispersive und v die absorptive Komponente des Bloch-Vektors. w stellt die Inversion, also die Besetzungsdifferenz der beiden Zustände dar. Ohne Dämpfung bewegt sich der Bloch-Vektor immer auf der Einheitskugel. Die Abbildung 2.8 zeigt die Position des Bloch-Vektors in den verschiedenen Zuständen des Zwei-Niveau-Systems. Wird eine Mikrowelle resonant eingestrahlte, dreht sich der Bloch-Vektor während der Wechselwirkungszeit τ um die Pulsfläche $A = \Omega_0 \tau$ um die u-Achse. Ist $A = \frac{\pi}{2}$, wird dies als $\frac{\pi}{2}$ -Puls bezeichnet. Befindet sich das System im Grundzustand, überführt der $\frac{\pi}{2}$ -Puls das System in die Superposition $|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|g\rangle + |e\rangle)$ (siehe Abbildung 2.8 rechts). Ein π -Puls überführt somit den Grundzustand in den angeregten Zustand. Im Falle einer Verstimmung dreht sich der Bloch-Vektor mit der verallgemeinerten Rabifrequenz um eine gekippte Drehachse $-(\Omega_0, 0, \delta)^{\mathrm{T}}$.



Abbildung 2.8.: Bloch-Kugeln mit links: Grundzustand $|g\rangle$, Mitte: angeregter Zustand $|e\rangle$, rechts: Bloch-Vektor nach Drehung mit Pulsfläche $A = \Omega_0 \tau = \frac{\pi}{2}$ um die *u*-Achse, hier in der Superposition $|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|g\rangle + |e\rangle).$

2.4.4. Relaxationsprozesse

Für die praktische Umsetzung von Quantenalgorithmen ist es äußerst wichtig die Relaxationszeiten des NV-Zentrums zu berücksichtigen. Diese Zeiten geben Aufschluss darüber, wie lange ein System statistisch in einem definierten Zustand verharrt, die gewünschte Dynamik ausführt, oder wann ein Verlust der Phaseninformation zu erwarten ist. Wird der Zustand zu spät ausgelesen, dauert ein Algorithmus zu lange, oder ist die Zeitspanne zwischen Quantenoperationen zu lang, kann dies zu falschen Ergebnissen führen. Es gibt unterschiedliche Mechanismen, die zu einer Beschränkung der praktischen Umsetzung führen können. Das Vorhandensein von Gitterschwingungen im Kristall und eines fluktuierenden elektrischen, wie magnetischen Feldgradienten mit ausreichender Intensität beeinträchtigen die Qualität des Qubits. Zusätzlich wirkt die skalare Kopplung durch die Spin-Spin-Wechselwirkung mit benachbarten Elektronenoder Kernspins auf das Qubit ein.

Longitudinale Relaxation

Die oberste Schranke einer solchen Zeitspanne stellt die Spin-Gitter-Relaxationszeit beziehungsweise die longitudinale Relaxationszeit T_1 dar. Sie gibt an, wann statistisch ein vorher definierter Zustand in ein Gleichgewichtszustand übergegangen ist und damit die maximale Zeit, in der eine Information auf dem Spin gespeichert werden kann. In Diamant existiert ein resultierendes Magnetfeld, hervorgerufen durch die Diamantstruktur, sowie durch thermische, rotierende und vibrierende Gitterschwingungen. Die Wechselwirkung des NV-Spins mit den Phononen trägt nur effektiv zur Relaxation bei, falls diese Schwingungen ungefähr der Larmor-Frequenz $\omega = \gamma_e B_z$ entsprechen, sodass einen Spin Flip verursacht werden kann. Die longitudinale Relaxationszeit ist definiert als die Zeit, die verstreicht bis die Population eines Zustands auf $\frac{1}{e}$ -tel zurückgegangen ist. Es handelt sich um einen exponentiellen Zerfall der Anfangspopulation ρ_0 während der Zeit τ :

$$\rho(\tau) = \rho_0 \,\mathrm{e}^{-\tau/T_1} \tag{2.52}$$

 T_1 kann für NV-Zentren in Diamant bei Raumtemperatur mehrere Millisekunden betragen [RBSR91].

Transversale Relaxation

Eine weitere Charakterisierung des NV-Zentrums kann durch die Dephasierungszeit beziehungsweise die freie induzierte Zerfallszeit T_2^* geschehen. Sie beschreibt den Einfluss der dipolaren Wechselwirkung des NV-Spins mit dem gesamten Spinbad. Dieses Spinbad verursacht ein fluktuierendes Magnetfeld am Ort des NV-Zentrums und kann energieerhaltene Spin Flips verursachen, sodass die Phaseninformation des NV-Spins verloren geht. Hierzu tragen, abhängig vom Diamant-Typ (siehe Tabelle 2.1) hauptsächlich die Menge an Sickstoffverunreinigungen und der ¹³C-Gehalt bei. Die gesamte Dynamik der Elektronenspins des N, sowie die des Kohlenstoffkernspins verursacht Änderungen im lokalen Magnetfeld. Wird der NV-Spin aus dem Grundzustand $|g\rangle$ mit einem $\frac{\pi}{2}$ -Puls in die Superposition $|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|g\rangle + |e\rangle)$ gebracht und für eine Zeit τ sich selbst überlassen, präzediert der Spin mit der Larmor-Frequenz in der xy-Ebene und sammelt währenddessen, durch die vom Spinbad verursachte Zeeman-Verschiebung, die zusätzliche Phase $\Delta \Phi$ auf:

$$\Delta \Phi(\tau) = \gamma_{\rm e} \int_0^\tau B_{\rm Spinbad}(t) dt \qquad (2.53)$$

Hierbei stellt $B_{\text{Spinbad}}(t)$ das vom Spinbad verursachte fluktuierende Magnetfeld dar. Nach einem weiteren $\frac{\pi}{2}$ -Puls wird die Population bestimmt. Das Signal oszilliert mit einer fallenden Amplitude von:

$$A_{Ramsey}(\tau) = A_0 e^{-(\tau/T_2^*)^n}$$
(2.54)

Welches n diesen Zerfall beschreibt hängt von der Umgebung ab. Die Messsequenz zur Bestimmung von T_2^* wird auch als *Ramsey-Sequenz* bezeichnet. Die Zerfallskonstante beläuft sich auf wenige Nanosekunden in natürlichem, bis zu 50 µs in hochreinem Diamant [KCB⁺03]. Zur normalen Oszillation des Signals, den Ramsey-Fringes, können zusätzliche Ausschläge oder Überhöhungen des Signals beobachtet werden, die normalerweise von dem NV-Zentrum benachbarten Kernspins, zum Beispiel von ¹³C Atomen herrühren [Pfe12]. Die Dephasierungszeit ist auch für die Auflösungsbegrenzung der Linienbreite des ODMR-Spektrums verantwortlich. Der direkte Zusammenhang ist durch die Frequenz-Zeit-Unschärfe gegeben. Werden mehrere ODMR-Spektren bei geringer Laserleistung und unterschiedlicher Mikrowellenleistung aufgenommen und anschließend die Linienbreite linear auf eine verschwindende Mikrowellenleistung extrapoliert, so findet man die bestmögliche Auflösung der Linienbreite für cw-ODMR.

Entkoppelt man den NV-Spin vom Spinbad hat nur die lokale Umgebung, wie etwa der Kernspin von ¹³C oder der Elektronenspin eines N oder eines anderen NV-Zentrums Einfluss auf die Kohärenzzeit. Die Messung verläuft analog zu der von T_2^* , doch wird zusätzlich in der Mitte der Zeit $\tau \text{ ein } \pi$ -Puls platziert. Dieser refokussiert die Phase und eliminiert so, im Idealfall vollständig, die Phasenverschiebung der kurzen Zeitspanne $\frac{\tau}{2}$. So lässt sich die aufgesammelte Phase reduzieren auf:

$$\Delta \Phi_{\rm red}(\tau) = \gamma_{\rm e} \int_0^{\frac{\tau}{2}} B(t) dt - \gamma_{\rm e} \int_{\frac{\tau}{2}}^{\tau} B(t) dt \qquad (2.55)$$

Dies geschieht mit der einfachsten Möglichkeit des dynamischen Entkoppelns, dem Spin-Echo. Die Spin-Echo-Sequenz wird analog zur Ramsey-Sequenz, mit einem zusätzlichen π -Puls nach halber Wartezeit vollzogen. Dadurch werden Fluktuationsfrequenzen, die kleiner als der Reziprokwert der Wartezeit sind, eliminiert. Die Einhüllende der Fluoreszenzintensität weist dann einen Rückgang, analog zu 2.54 auf:

$$A_{\text{Spin-Echo}}(\tau) = A_0 e^{-(\tau/T_2)^n}$$
 (2.56)

Auch hier ist n umgebungsabhängig und es gilt $n \gtrsim 2$. Für T_2 wurden bei Raumtemperatur bereits Zeiten von mehr als 1,8 ms gemessen [BNT⁺09]. In jedem Fall gelten für

die Relaxationszeiten die Ungleichungen

$$T_2^* \le T_2 \le 2T_1. \tag{2.57}$$

Die gepulste ODMR nutzt genau diese Technik aus, weshalb es hiermit möglich ist feinere Spektren aufzunehmen und so zum Beispiel den Stickstoff im NV-Zentrum zwischen ¹⁴N und ¹⁵N zu unterscheiden. Durch verschiedene Pulssequenzen ist hier für die Auflösungsbegrenzung nicht T_2^* sondern, je nach Anwendung, T2 oder die Kohärenzzeit des Kernspins maßgeblich.

2. Theoretischer Hintergrund

B Das Setup

Die Theorie zeigt, dass es möglich ist das NV-Zentrum zu mikroskopieren, die magnetische Resonanz optisch zu detektieren und den Zustand des Spins mithilfe von Mikrowellen zu manipulieren. Nun wird der Messplatz vorgestellt, der die praktische Umsetzung der erläuterten Theorie ermöglichen soll. Die Gestaltung des an Luft aufgebauten Setups geschieht stets derart, dass die Möglichkeit einer Integration in den Implantationsaufbau bestehen bleibt oder auf dessen Realisierung hingearbeitet wird. Eine Liste der im optischen, wie im technischen Setup verwendeten Teile mit Namen des Herstellers und der Artikelbezeichnung ist in Anhang A.2 zu finden.

3.1. Optisches Setup

Ein Schema des gesamten optischen Aufbaus inklusiver Anknüpfung an die Implantationskammer wird in Abbildung 3.1 dargestellt. Neben dem Laser und weiteren optischen Komponenten besteht das Setup aus drei wesentlichen Teilen (grau hinterlegt). In der Implantationskammer befindet sich im Ultrahochvakuum eine Ionenfalle. Über die Endkappen und Ablenkelektroden gelangt das Ion, zum Beispiel ein Stickstoffion, zu einer Ionenlinse, die es auf wenige Nanometer genau an eine Stelle im Diamanten fokussiert. Mit einer noch zu integrierenden Wärmequelle werden die während der Implantation entstehenden oder nachträglich erzeugten Fehlstellen mobil gemacht, sodass sich an der Stelle, an der zuvor das Ion implantiert wurde, ein Farbzentrum bilden kann. Um den Erfolg der Implantation sowie der Farbzentrenbildung verifizieren zu können, befindet sich in der Vakuumkammer ebenfalls ein Objektiv. Mittels des Lasers und des konfokalen Mikroskops lässt sich somit der Diamant, wie in Kapitel 2.3 beschrieben, an der Implantationsstelle auf NV-Zentren untersuchen. In [Wol12] und [Wei11] wird der Implantationsprozess und der dazugehörige Aufbau näher erläutert.



Abbildung 3.1.: Kompletter Aufbau zur deterministischen Implantation, hochauflösenden Detektion und gezielten Manipulation von NV-Zentren

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein ODMR-Messplatz errichtet, der durch Integration eines Klappspiegels das bestehende konfokale Mikroskop und die Laserquelle mitverwendet. Ziel dieses Aufbaus ist es unter einfachen Bedingungen die ODMR-Technik zu entwickeln und zu erproben, um sie schließlich für das Vakuumsetup tauglich zu machen. So sollen langfristig nicht nur der Implantationserfolg durch das konfokale Mikroskop sichergestellt, sondern auch durch ODMR-Methoden die Umgebung der zuvor hergestellten Farbzentren untersucht werden. Das integrierte ODMR-Setup soll unter anderem die Kopplungsstärke zu benachbarten Elektronenspins zuvor implantierter NV-Zentren, oder zu benachbarten ¹³C-Kernspins ermitteln. Entspricht die Umgebung nicht der gewünschten, kann neu implantiert werden, sodass es möglich sein wird, ein beliebiges Array an NV-Zentren mit anwesenden Kernspins herzustellen, welches schließlich als Quantenprozessor oder -register genutzt werden kann.

Der ODMR-Messplatz bedient sich eines 200 mW diodengepumpten Festkörperlasers, der einen kollimierten monochromatischen und kohärenten Strahl mit einer Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm erzeugt. Dieser zeigt bei maximaler Leistung die stabilste Amplitude. Um dennoch die Laserleistung einstellen zu können befindet sich als erstes eine Halbwellenplatte (half wave plate, HWP) und ein polarisierender Strahlteiler (polarized beam splitter, PBS) im Strahlengang.

Darauffolgend ist ein elektrooptischer Modulator (electro optical modulator, EOM) integriert. Zusammen mit dem dazugehörigen PBS lassen sich zeitlich definierte Laserpulse mit einer gemessenen ansteigenden und abfallenden Flanke von (20 ± 1) ns erzeugen. Der Spiegel, die weitere HWP und der Faserkoppler dienen der sauberen Einkopplung des Strahls in eine Einzelmodenfaser (single mode fiber, SMF).

Die SMF lässt nur die Gauß-Mode des Strahls durch, der durch den Faserkoppler und zwei weitere Linsen mit einer Brennweite von f = 75 mm und f = 200 mm auf die Größe der aktiven Apertur des Objektivs zu einem kollimierten Strahl aufgeweitet wird. Der anschließende PBS reinigt noch einmal die Polarisation, bevor der Strahl auf den dichroischen Spiegel trifft. Dieser reflektiert die Laserwellenlänge zu mehr als 90 %, transmittiert jedoch mehr als 95 % der Wellenlängen zwischen 545 und 750 nm. So wird der größte Teil des Laserlichts über mehrere Spiegel zum Objektiv des ODMR-Messplatzes geleitet.

Vor dem plan-apochromatisch korrigierten Öl-Immersions-Objektiv mit einer 100-fachen Vergrößerung, einer numerischen Apertur (NA) von 1,40 und einem freien Arbeitsabstand von 0,09 mm befindet sich noch eine Viertelwellenplatte (quarter wave plate, QWP), die aus dem linear polarisierten einen zirkular polarisierten Strahl macht. Das Objektiv fokussiert nicht nur das anregende Licht in die Probe, sodass auch nur in diesem Bereich Fluoreszenz angeregt werden kann, es dient auch gleichzeitig zur Aufsammlung der Fluoreszenz. Das Fluoreszenzlicht, wie auch Reflexionen des anregenden Strahls passieren wieder die QWP, wonach zumindest der reflektierte Strahl wieder linear polarisiert ist. Nachfolgend treffen sie auf den dichroischen Spiegel, der wieder mehr als 90 % des grünen Lichts reflektiert, das Fluoreszenzlicht jedoch zu mehr als 95 % transmittiert.

Die erste Linse mit einer Brennweite von f = 75 mm im konfokalen Mikroskop fokussiert Photonen, die aus dem Fokus des Objektivs stammen auf eine Lochblende mit einem Durchmesser von 25 µm . Photonen, die nicht aus dem Fokus kommen, werden größtenteils von der Lochblende ausgeblendet. Jene, die die Lochblende passieren, werden von einer weiteren Linse mit f = 75 mm auf den sensiblen Bereich eines Lawinenphotodiode (avalanche photo diode, APD) fokussiert, die als Einzelphotonenzähler fungiert. Vor der APD ist noch ein Langpassfilter integriert, der nur Licht mit Wellenlängen oberhalb von 641 nm transmittiert. Dies schneidet zwar 10-20 % des Fluoreszenzspektrums ab, filtert jedoch die Raman-Peaks von Diamant [Wit05, KMZW00], sowie die Reste des reflektierten Anregungsstrahls heraus und verhindert so, dass Photonen, die nicht von den NV-Zentren emittiert wurden, als Fluoreszenzphotonen detektiert werden.

3.2. Technisches Setup

Ein Schema der für die ODMR, die gepulsten Messungen und die Mikroskopie notwendigen Gerätekomponenten und deren Verwendung zeigt Abbildung 3.2. Vom Computer aus ist es möglich mithilfe des Master Control Programs (MCP), das in 3.2.4 genauer beschrieben wird, Messroutinen zu erstellen und auszuführen, die einzelnen Geräte anzusteuern und die gemessenen Werte zu empfangen, zu speichern und darzustellen. Der PC übernimmt somit größtenteils die Experimentsteuerung, -synchronisierung und graphische Aufbereitung der Messdaten. Der PC ist mit einem USB zu GPIB-Adapter mit dem Mikrowellen-Signalgenerator verbunden. Diese Mikrowellenquelle kann Frequenzen von 2 bis 20 GHz mit einer Genauigkeit von 0,01 Hz bei Leistungen von -20 bis +19 dBm mit einer Genauigkeit von 0,01 dBm generieren. Der Signalgenerator wird für die Experimente im Rahmen dieser Arbeit im cw-Modus bei einer Frequenz und Leistung, oder in einem Listmodus mit bis zu 2000 Frequenz mit jeweiliger Leistung betrieben. Der List-Sweep Modus verwendet eine vom Computer generierte Liste aus Frequenzen mit einer jeweils dazugehörigen Leistung. Diese Liste wird nach der Übermittlung per GPIB im Gerät gespeichert und auf Befehl, ebenfalls vom PC mittels GPIB gesendet, wird die erste Frequenz mit entsprechender Leistung generiert. Mit einem weiteren Befehl lässt sich zum nächsten Listeneintrag springen und somit eine Liste diskreter Frequenzen durchfahren.

Der Ausgang des Mikrowellen-Signalgenerators ist mit einem nahezu verlustfreien SMA-Koaxialkabel mit einem Switch verbunden. Dieser Switch erlaubt es mit einer Schaltzeit von circa 10 ns zwischen zwei Ausgängen hin- und her zu schalten. Die Steuerung des Switchs geschieht per Transistor-Transistor-Logik-Signal (TTL-Signal) vom einer



Abbildung 3.2.: Equipment für ODMR, gepulste Messungen, wie auch die Mikroskopie an NV-Zentren. Der PC kontrolliert und synchronisiert mittels Master Control Programm das gesamte Experiment und verarbeitet die Zählergebnisse. Er übermittelt die Messsequenzen an den FPGA, der diese auf Befehl hin ausführt. Der PC erstellt und transferiert ebenfalls die Mikrowellenfrequenz /-frequnezliste an den Mikrowellengenerator. Ebenso steuert er das Nanopositioniersystem und erhält die wahlweise vom Zähler oder TimeHarp verarbeiteten Zählraten, die die APD aufnahm.

programmierbare Logikgatter-Anordnung (field programmable gate array, FPGA). Ein Ausgang des Switchs ist mit einem 50 Ω SMA-Abschlusswiderstand versehen, da der Switch lediglich als Ein- und Ausschalter fungieren soll.

Der nicht abgeschlossene Ausgang ist wiederum mit einem SMA-Koaxialkabel mit dem Eingang eines 16 W Hochleistungs-Mikrowellenverstärkers verbunden. Nach der Verstärkung der Mikrowelle wird diese wieder mit einem SMA-Koaxialkabel zum Wellenleiter, auf dem sich die Diamantprobe und die Mikrowellenantenne befinden, geleitet. Genauere Informationen zu diesem Wellenleiter und der Antenne enthält das Kapitel 3.2.2. Da die Mikrowellenantenne in Transmission betrieben wird, folgt ihr an einem weiteren SMA-Koaxialkabel ein 50 Ω SMA-Abschlusswiderstand und bei höheren Mikrowellenleistungen davor geschaltetem Attenuator, um Reflexionen und Interferenzen

zu verhindern.

Das optische Setup zur Mikroskopie der NV-Zentren und Fluoreszenzauslese bei ODMR-Messungen wurde in Kapitel 3.1 erläutert. Hier sei anzumerken, dass es sich beim EOM-Treiber um einen Pulsverstärker in Form eines Digitaltreibers den elektrooptischen Modulatoren (EOM) handelt. Er kann ein TTL-Eingangssignal mit einer Verzögerungszeit von 150 ns in die entsprechenden Hochspannungspulse umwandeln. Der Treiber erlaubt es eine Offset-Spannung für den optimalen Arbeitspunkt, sowie eine Pulsspannung einzustellen. Bei richtig gewählten Parametern, kann der FPGA per TTL-Signal die Polarisation des Laserstrahls um 90° drehen, sodass der dazugehörige PBS den Strahl entweder vollständig transmittiert oder reflektiert und der Strahl somit hinter dem PBS ein- oder ausgeschaltet ist. Der EOM ermöglicht es also, definierte Initialisierungsund Auslesepulse zu erzeugen.

Die Diamantprobe, die mikroskopiert oder an deren NV-Zentren ODMR-Messungen durchgeführt werden, befindet sich auf dem in Kapitel 3.2.2 genauer beschriebenen Wellenleiter. Dieser ist seinerseits auf einem Nanopositioniersystem befestigt. Der digitale Mehrkanal-Piezokontroller erlaubt es mittels Steuerung vom PC die Diamantprobe im open-loop Modus auf 1 nm genau in einem Intervall von 300 µm je Achse dreidimensional im Raum zu bewegen. Genaueres hierzu ist in Kapitel 3.2.1 nachzulesen.

Die APD des konfokalen Mikroskops, siehe 3.1, sendet bei Detektion eines Photons einen TTL-Puls mit 5 V und einer Pulsdauer von 25 ns. Diese TTL-Pulse können vom PC aus über den FPGA mittels TTL-Signal am Switch zum Zähler, oder zur ECL-Box vor dem TimeHarp weitergeleitet werden. Vor dem Zähler muss das Signal der APD noch mit einem 50 Ω Abschlusswiderstand an einem koaxialen T-Verbinder abgeschlossen werden.

Als Zähler können zwei Geräte verwendet werden. Es steht eine NI-Karte im PCI-Steckplatz des PCs mit einer Anschlussbox zum Zählen der Photonen zur Verfügung. Sie beinhaltet einen 20 MHz-Counter, der sich jedoch nicht sehr flexibel einsetzen lässt, da der Zähler nur softwareseitig gestartet und gestoppt werden kann. Die Programmiersprache C++, in der alle Messroutinen geschrieben sind, erlaubt allerdings nur eine Ansteuerung mit ganzzahligen Vielfachen einer Millisekunde. Aus diesem Grund wurde ein alternativer Zähler auf Basis eines Arduino-Boards eingesetzt. Dieser erlaubt es per Software eine Messzeit einzustellen und wenn nötig in kleinere Einheiten von mindestens 1 µs aufzuteilen. Start der Messung ist jeweils erst bei Empfang eines TTL Pulses vom FPGA. Da die Pulse der APD für diesen Zähler zu kurz sind, wird das Signal mit einem XOR-Gatter und einer 1,5 m Delayline entsprechend verlängert.

Für die gepulsten Messungen in denen die auf Nanosekunden genaue zeitabhängige Zählrate benötigt wird, steht ein *TimeHarp* bereit. Dieses Photonen-Zähl-System hat eine Zeitauflösung von 4 bis 512 ps. Es verfügt über zwei gleichwertige Eingangskanäle mit denen auch Korrelationsmessungen möglich sind. In diesem Setup wird einer der Kanäle zum Zählen der Photonen und der andere als Synchronisationskanal verwendet. Das Signal für die Synchronisierung kommt vom FPGA. Die beiden Kanäle des TimeHarps können keine TTL-Signale, sondern nur Spannungen zwischen idealerweiser -400 und -200 mV verarbeiten, die zusätzlich nur steigende beziehungsweise fallende Flanken von maximal 2 ns aufweisen dürfen. Aus diesem Grund wird eine *emittergekoppelte Logik-Schaltung* (ECL-Schaltung) vor die Eingänge geschaltet. Zusätzlich müssen an beide Eingänge des TimeHarps T-Koaxialverbinder mit einem 50 Ω Abschlusswiderstand angeschlossen werden. Diese ECL-Box wird im Anhang A.1 näher erläutert. Da für den TimeHarp keine Lizenz zur Nutzung der DLL vorliegt, kann der TimeHarp nicht mit dem MCP gesteuert werden. Die Steuerung des TimeHarp geschieht mit der mitgelieferten Software.

Der FPGA erlaubt es, TTL Signale mit einer Genauigkeit von 10 ns auf bis zu 64 Kanäle unabhängig zu erzeugen. Dadurch werden die bereits angesprochenen Geräte mit TTL-Pulsen oder Synchronisationssignalen versorgt. Es lassen sich sowohl Einzelsignale, wie auch ganze Sequenzen aufeinanderfolgender Signale mit zeitlichem Zusammenhang wiedergeben. Das ermöglicht die zeitliche Synchronisation aller Geräte während einer oder mehrerer aufeinanderfolgender Messungen. Somit initialisiert der Computer alle Geräte für den Messprozess, gibt das Startsignal und empfängt die Daten. Es muss einzig die Verzögerung jedes Signals zum Gerät und deren Reaktionszeit berücksichtigt werden. Auf den genauen Ablauf einer jeden Messung wird im jeweiligen Abschnitt in Kapitel 4 eingegangen.

3.2.1. Mikroskoptisch

Ein Bild des in Abbildung 3.1 gezeigten (grau hinterlegten) ODMR-Messplatzes ist in Abbildung 3.3 zu sehen. Die Füße, sowie die Deckplatte bestehen aus massivem Aluminium und bilden somit einen äußerst stabilen Tisch. Die hohe Stabilität sowie

3. Das Setup

das hohe Gewicht prädestiniert den Tisch für den Einsatz der Ground State Depletion-Mikroskopie (GSD-Mikroskopie), oder die Erweiterung zu einem Stimulated Emission Depletion-Mikroskop (STED-Mikroskop). An beiden Füßen kann an der nach innen zeigenden Fläche mit einer Adapterplatte ein Post parallel zum Untergrund befestigt werden. Dieser ist vertikal und horizontal verschiebbar und kann einen Spiegelhalter aufnehmen.



Abbildung 3.3.: ODMR-Messplatz zur Manipulation und hochauflösenden Detektion von NV-Zentren.

Der Spiegel ist so justiert, dass sich die Symmetrieachse in Ausbreitungsrichtung des anregenden Strahls mit der Rotationssymmetrieachse des Objektivs überlagert. In der Tischplatte ist eine Bohrung mit Feingewinde eingearbeitet, welche es erlaubt einen Adapter zur Höhenverstellung des Objektivs auf mindestens 50 µm genau zu arretieren. Dies ist nötig, da auf einen grob verstellbaren Verschiebetisch in senkrechter Richtung, zugunsten der Stabilität verzichtet wurde. Das Objektiv ist wiederum an diesem Adapter befestigt und mit einer kleinen Ölauffangrinne umgeben. Unterhalb der Strahldurchführung kann an der Tischplatte ein Cage-System zu Aufnahme eines Rotationshalters für die Viertelwellenplatte befestigt werden.

Auf der Tischplatte befindet sich ein Mikroskopiekreuztisch, der als stabile Plattform für das Nanopositioniersystem dient. Mittels Mikrometerschrauben stellt er einen Stellweg von 25 mm bereit. Das Nanopositioniersystem besitzt drei aktive Achsen mit einem Stellweg von je 300 µm bei einer Auflösung von 0,4 nm im ungeregelten und 1 nm im geregelten Modus. Mit seinen keramisch isolierten Piezoaktoren ist er äußerst temperaturstabil und weist eine Belastbarkeit von 50 N auf. Der Wellenleiter für die Mikrowelle, der gleichzeitig als Diamanthalter dient, ist schließlich mit einem Adapter auf dem Nanopositioniersystem befestigt. Kleine Scherkräfte, wie sie durch die Koaxialkabel entstehen können, führen durch die Kraft des Positioniersystems, wie durch die Hilfe der kapazitiven Sensoren zur Repositionierung zu keinem bis sehr geringen Positionsdrift. Dieses Problem trat bei einem zuvor getesteten Positioniersystem auf, was bis zuletzt ODMR-Messungen mit diesem System unmöglich machte. Hierzu befinden sich mehr Informationen im Anhang C.1. Das aktuelle System erlaubt bei angeschlossenen Kabeln und entspannter Verlegung, Messungen über mehrere Stunden, ohne das NV-Zentrum aus dem Fokus zu verlieren. Wird der Diamant schrittweise durch den Fokus des Objektivs gefahren und die Fluoreszenz gegen die Position aufgetragen, entsteht eine aus Schnitten bestehende Karte des Diamanten. So kann der Diamant mit höchster Genauigkeit in der Ebene und Tiefe gescannt, oder die Fluoreszenz an einer bestimmten Position für zum Beispiel die ODMR aufgenommen werden.

3.2.2. Mikrowellenantenne

Neben der optischen Auslese und dem technischen Equipment zur gepulsten Mikrowellengeneration fehlt noch die Möglichkeit das Mikrowellenfeld am Ort des NV-Zentrums zu erzeugen. Da es für Mikrowellen keine ausreichend gute Richtantennen gibt, wird das Nahfeld einer Antenne genutzt. Eine im Vergleich zu Koaxialleitern offene und damit zugängliche Struktur bietet die *Streifenleitung*. Sie besteht aus einem Trägersubstrat mit einer relativen Permittivität $\epsilon_r \neq 1$. Dieses Trägermaterial wird einseitig vollständig mit einer leitenden Schicht überzogen, die als Masse fungiert. Auf der anderen Seite werden aus ebenfalls leitendem Material Streifen aufgebracht, an denen die Signalspannung angelegt wird. Welche Gestalt die dadurch erzeugten elektrischen und magnetischen Felder besitzen, hängt im Allgemeinen von der Dimensionierung und der verwendeten Wellenlänge des Signals ab.

Abbildung 3.4 links stellt die Felder für den Fall tiefer Frequenzen dar. Das bedeutet, dass der Abstand zwischen Masse und Leiterstreifen, also die Höhe des Trägers sehr klein im Vergleich zur Wellenlänge, also $h \ll \lambda$, ist. In diesem Fall treten fast ausschließlich transversal elektrische Moden (TEM) auf und das magnetische Feld steht senkrecht zum elektrischen. Andernfalls treten auch longitudinale Feldanteile auf, die zu schwer kalkulierbaren Feldern führen. Vor allem soll das magnetische Feld am Ort des NV-Zentrums und nicht auf der Oberfläche des Leiters erzeugt werden. Eine weitere Verbesserung der Signalleitung geschieht durch das Aufbringen weiterer Masseschichten im Abstand d zum Leiterstreifen, siehe Abbildung 3.4 rechts. Hier ergeben sich, je nach Wahl des Verhältnisses von Abstand d zur Höhe des Trägersubstrats h, stärker, oder weniger stark ausgeprägte Felder zwischen Leiterstreifen und benachbarter Masseschicht. Diese Variante wird als *koplanare Streifenleitung* bezeichnet. Sowohl bei der normalen Streifenleitung, als auch bei ihrer koplanaren Version befinden sich die Felder für sehr schmale Streifen, also $b \ll h$, ebenso innerhalb, wie außerhalb des Trägermaterials. Für nähere Informationen zu Mikrowellenleitern wird auf [Poz12] verwiesen.



Abbildung 3.4.: links: Streifenleitung, rechts: koplanare Streifenleitung, jeweils mit schematisch dargestelltem transversalen elektrischen und magnetischen Feld für $h, d \ll \lambda$ bei einer momentan am Leiterstreifen gegenüber den geerdeten Grundplatten (unten und seitlich) positiv anliegenden Spannung.

Würde der Diamant nun einfach auf einem solchen Leiter aufgebracht werden, könnte es zu starken Reflexionen des anregenden Strahls kommen. Auch kann das Trägermaterial einen Fluoreszenzuntergrund erzeugen und somit den Kontrast verringern. Um dies zu umgehen wird ein durchgehendes Loch im Wellenleiter erzeugt und darüber der Diamant geklebt, siehe Abbildung 3.5. Hier ist darauf zu achten, dass der Kleber nur seitlich des Diamanten aufgetragen wird, da auch von ihm störende Fluoreszenz ausgehen kann. Das Loch kann außerdem bei der Ausrichtung der Probe vor dem Objektiv und der Orientierung auf dem Diamanten hilfreich sein, da der transmittierte Strahl ein projeziertes Abbild einer oberflächlichen Struktur auf dem Diamanten, oder des Drahtes erzeugt. Nun wird das fehlende Stück des Leiterstreifens durch einen dünnen Draht, die Ader eines Kabels ersetzt. Dieser sollte gerade und so nahe wie möglich an der Oberfläche des Diamanten verlaufen. Der bei dem in Abbildung 3.5 gezeigten Wellenleiter verwendete Draht hat einen Durchmesser von ungefähr 30 µm und weist einen Kupfergehalt von mehr als 99 % auf. Der Wellenleiter ist nach gebräuchlichen Maßen von b = 2,5 mm, d = 1,1 mm und $h \approx 1,6$ mm für die koplanare Streifenleitung und Außenmaßen von 74 mm \times 31,5 mm \times 1,6 mm gefertigt. Beim Trägermaterial handelt es sich um FR4, einem Verbundwerkstoff aus mit Epoxidharz durchtränkten Glasfasergelege. Dieser Werkstoff wird vor allem aufgrund seiner Permittivitätszahl von $\epsilon_{\rm r} \approx 4$ [ABLSS01], bevorzugt bei Hochfrequenzschaltungen eingesetzt. Das FR4 ist beidseitig mit einer 30 µm dicken Kupferschicht versehen. Die Enden wurden zur Integration in das in Kapitel 3.2 beschriebene Setup mit SMA-Steckern ausgestattet, die auch für eine Erdung der beiden Masseschichten links und rechts, wie auch der unteren sorgen. Die Löcher zur Befestigung des Wellenleiters auf dem Verschiebetisch sind, um Störungen zu vermeiden, weit außen angebracht. Die Bemaßung und die Dielektrizitätszahl des Trägermaterials gewährleisten, dass $h, d \ll \lambda$ gilt und damit hauptsächlich TE-Moden auftreten. Die einzigen Abweichungen von der gezeigten Feldverteilung sind herstellungsbedingt und kommen von der veränderten Geometrie der Streifenleitung durch die Unterbrechung und den Draht.



Abbildung 3.5.: koplanarer Wellenleiter mit dem Diamanten und der darüber liegender Antenne

3. Das Setup

Diese simpelste Form einer Antenne ist für normale ODMR und gepulste Messungen ausreichend. Bei dauerhaften Leistungen am Signalgenerator von weniger als -10 dBmist die Wärmeentwicklung so gering, dass keine Drifts der Farbzentren beobachtet werden können. Auch kann mit dieser Antenne ausreichend Leistung in den Diamanten eingebracht werden, um auch in einer Entfernung der NV-Zentren von mehr als 50 µm zum Draht noch ODMR messen zu können. Für empfindlichere Messungen oder solche, für die mehr Mikrowellenleistung notwendig ist, sollte eine genaue Berechnung der Dimensionierung des Wellenleiters und der Form der Antenne durchgeführt werden. Es existieren viele Softwarelösungen, um koplanare Schaltkreise inklusive Antenne auf eine Impedanz von 50 Ω zu optimieren. Hierzu könnte zum Beispiel Comsol Multiphysics eingesetzt werden, welches zur Modellierung und Simulation eines Elektromagneten verwendet wurde (siehe Kapitel 3.2.3). Eine Optimierung wäre die Beseitigung der Reflexionen, die am Übergang vom Streifenleiter zum Draht auftreten, wie es in [Wil11] geschehen ist. Eine noch effektivere Variante stellt die lithografische Aufbringung des Streifenleiters inklusive Antenne auf ein Deckglas, wie es für die Mikroskopie verwendet wird, dar. Auf dieses Deckglas kann anschließend der Diamant aufgebracht werden, oder das Deckglas wird fest mit dem Objektiv verbunden, sodass ausschließlich die Diamantprobe verfahren werden kann. Somit kann jedes NV-Zentrum ODMR-Messungen unterzogen werden und es muss nicht mal beim Probenwechsel erneut gelötet werden. Für die Mikroskopie stellt das Deckglas auch kein Hindernis dar, da das verwendete Objektiv für die Verwendung mit Deckgläsern einer Dicke von 0,17 mm geeignet ist. Weniger flexibel, dafür noch leistungsstärker, ist das direkte Aufbringen der Struktur auf den Diamanten. Wird die Mikrowellenantenne in Form eines Ω gestaltet, werden damit im Inneren der Struktur weitgehend homogene Felder erzielt [Str12]. Auch bringt der Einsatz von Gold- statt Kupferbeschichtungen den Vorteil, dass die Immersionsölqualität nicht durch Oxidation herabgesetzt wird.

Da die einfache Bauform mit einem dünnen Draht als Antenne für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen ausreichend ist, wird auf eine aufwendige Berechnung und teure Herstellung verzichtet und der eigens gefertigte Wellenleiter aus Abbildung 3.4 verwendet.

3.2.3. Permanent- und Elektromagnet

In Kapitel 2.4.2 ist beschrieben, wie die Zustände $|{}^{3}A_{2}, m_{s} = 0\rangle$ und $|{}^{3}A_{2}, m_{s} = -1\rangle$ des NV-Zentrums als Zwei-Niveau-System angesehen und damit als Qubit verwendet

werden können. Dazu ist es nötig durch Zeeman-Aufspaltung die Entartung des Zustands $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s} = \pm 1\rangle$ aufzuheben. Um mit reinen Spinzuständen arbeiten zu können, muss das zur Aufspaltung verwendete Magnetfeld vor allem für größere magnetische Flussdichten parallel zur Symmetrieachse des NV-Zentrums ausgerichtet werden. Dazu können prinzipiell zwei Ansätze verfolgt werden, die im Folgenden beschrieben sind.

Permanentmagnet

Ein Ansatz basiert auf dem Einsatz von Neodymmagneten. Neodym ist ein chemisches Element welches in der Legierung Nd₂Fe₁₄B zur Herstellung starker Permanentmagneten verwendet wird [HCPY84]. Das Design eines Halters für solche Magneten, siehe Abbildung 3.6 links, wurde vom *Institut für Quantenoptik Ulm*¹ übernommen. Die Anordnung der zwölf 1 cm³ großen Neodymmagnet-Würfel erfolgt nach der Darstellung in Abbildung 3.6 rechts. Durch die entgegengesetzte Ausrichtung der Pole der linken zur rechten Seite des Kreuzes wird das Magnetfeld in der Mitte unterhalb beziehungsweise oberhalb der Anordnung gestaucht. Dieser Bereich definiert den Arbeitsbereich für die NV-Zentren. Zur Einstellung der Stärke des Magnetfeldes und dessen Winkel zur NV-Achse wurde der Halter an einem manuellen XYZ-Verschiebetisch mit einem Stellweg von 25 mm je Achse angebracht.



Abbildung 3.6.: links: Halter der Magnete, rechts: Anordnung der Permanentmagnete im Halter, die eine Hälfte (blau) sollte gegenpolig zur anderen Hälfte (grün) eingelegt werden

So lassen sich mittels Mikrometerschrauben die Position des Magneten über der Diamantprobe einstellen und anschließend durch die Messung eines ODMR-Spektrums der

¹ http://www.quantenoptik.de/

Betrag und Winkel des Magnetfelds bestimmen. Durch Wiederholung dieser Prozedur wird sukzessive das benötigte Magnetfeld eingestellt. Eine Erleichterung des Verfahrens würde ein computergesteuerter Verschiebetisch bringen, der zusätzlich zu den drei Verfahrachsen auch eine Rotation des Magneten ermöglicht. Die schrittweise Annäherung könnte vollständig von einer Software übernommen werden.

Für die spätere Eingliederung des ODMR-Messplatzes in den Implantationsaufbau können Neodymmagneten, zum Beispiel in Form von Würfeln mit 1 mm Kantenlänge, direkt auf dem Wellenleiter angebracht werden. Diese können mit kleinen Motoren zum Diamanten hin oder von ihm wegbewegt werden. Sind sie zusätzlich drehbar, kann jede beliebige Feldrichtung am Ort des NV-Zentrums eingestellt werden. Bei jedem Ansatz mit Permanentmagneten die Zeeman-Aufspaltung zu steuern, tritt jedoch das Problem auf, dass das Magnetfeld, bei späterer Zusammenführung mit dem Implantationsaufbau, die Flugbahn der Ionen während des Implantierens verändert. Folglich müssen die Magneten in eine Abschirmung gefahren werden.

Elektromagnet

Um jede Störung der Ionenflugbahn durch ein Magnetfeld zu eliminieren, wurde ein Elektromagnet entworfen. Dieser lässt sich abschalten, sodass keine weiteren Vorkehrungen für den Implantationsaufbau getroffen werden müssen. Ein solcher Magnet ließe sich zudem mittels ansteuerbaren Spannungsnetzgeräten mit dem MCP vom Computer aus steuern.

Ziel sollte sein, einen möglichst kleinen Magneten zu entwickeln, mit dem man in der Lage ist, das Magnetfeld in einer Ebene in beliebiger Richtung und Stärke festzulegen. Die dritte Raumrichtung muss nicht berücksichtigt werden, da es sich bei den vorhandenen Proben um Diamanten mit einer vorwiegend 110-Kristallorientierung der NV-Zentren handelt, sodass die Symmetrieachsen der NV-Zentren parallel zur Diamantoberfläche liegen.

Die meisten Messungen werden in schwachen Magnetfelder durchgeführt, das heißt, dass die magnetische Flussdichte viel kleiner als die Nullfeldaufspaltung ist. Für einige Anwendungen wäre es jedoch von Vorteil in den Bereich der Nullfeldaufspaltung, oder sogar darüber zu kommen. Ein weiteres Kriterium ist die Möglichkeit der Verwendung im Vakuum. Ein stromdurchflossener Leiter produziert Wärme, die im Vakuum jedoch nicht über Konvektion, sondern ausschließlich über Strahlung abgegeben werden kann. Einige Komponenten im Vakuum des Implantationsaufbaus dürfen nicht Temperaturen von mehr als 100°C ausgesetzt werden, da dies ihre Haltbarkeit beeinträchtigt oder womöglich die Präzision des Implantierens durch Verziehen der Bauteile verursacht. Eine Kühlung wurde vorerst ausgeschlossen.

Zur Modellierung und Simulation wurde die Software *Comsol Multiphysics*² verwendet. Diese erlaubt das Lösen multidisziplinärer physikalischer Phänomene durch die Finite Element Methode (FEM) beziehungsweise Finite Volumen Methode (FVM) und eine Vielzahl an numerischen Lösungsverfahren. Auf Grundlage der Maxwellgleichungen lassen sich mit dem AC/DC-Modul stationäre und dynamische elektrische und magnetische Felder im dreidimensionalen Raum berechnen. Das Untermodul Magnetische Felder (mf) beinhaltet das Ampère'sche Gesetz als Feature und ermöglicht die Nutzung von Materialspezifikationen wie der relativen Permeabilität $\mu_{\rm r}$.

Um die Temperaturbegrenzung zu berücksichtigen, wurde eine zusätzliche Bedingung implementiert. Sie verknüpft die Maximaltemperatur T_{max} mit einer maximalen Stromstärke I_{max} durch das Stefan-Bolzmann'sche Strahlungsgesetz:

$$T_{\max} - \sqrt[4]{\frac{R}{\lambda \sigma F} I_{\max}^2 + T_0^4} \ge 0$$
 (3.1)

Hier ist $R = \rho_R \frac{l}{A}$ der elektrische Widerstand des Drahts der Länge l und der konstanten Querschnittsfläche A. ρ_R stellt den spezifischen Widerstand und λ die Wärmeleitfähigkeit des Drahtmaterials dar. F ist die Mantelfläche des Spulendrahts und T_0 die Umgebungstemperatur. Die Wärmeaufnahme des Spulenkerns und deren Aufhängung durch direkten Kontakt wurde vernachlässigt, sodass durch Gleichung 3.1 die vorgegebene Maximaltemperatur als oberste Grenze sichergestellt ist. Die in der Simulation verwendeten materialspezifischen Kennwerte können der Tabelle B.1 des Anhangs entnommen werden.

Zunächst wurde ein Dreibein, wie in [Fra13], aus zylindrischen Weicheisenkernen modelliert. Die drei Zylinder wurden vom gedachten Schnittpunkt, dem Ursprung des Koordinatensystems eines Dreibeins, etwas zurückversetzt, dass dort der Diamant platziert werden kann. Um jeden der Kerne wurde eine zylindrische Spule modelliert. In

² http://www.comsol.de/

diesem Modell war es mit Spulen einer Länge kleiner als 6 cm und einem Durchmesser von weniger als 4 cm nicht möglich magnetische Flussdichten von mehr als 70 Gauß am Ursprung zu erzeugen, ohne I_{max} zu überschreiten. Es wurden verschiedene Kerndurchmesser und -längen, sowie Abstände vom Ursprung simuliert. Auch eine Optimierung der Kernspitzen zum Ursprung hin durch verschiedene Geometrien brachte keinen entscheidenden Fortschritt.

Wird jedoch die Geometrie eines Kerns so gewählt, dass die Feldlinien an der Diamant abgewandten Seite nicht austreten, lassen sich die magnetischen Flussdichten erheblich vergrößern. Die Modellierung erfolgte analog zu einer Geometrie, wie sie zum Beispiel für Schreib- und Leseköpfe von Videorekordern verwendet werden. Abbildung 3.7 zeigt zwei solche ineinander gesetzte Köpfe mit jeweils zwei unabhängigen Spulen an deren Flügeln. Ein Kern wurde durch ein 1 cm extrudiertes Bézier-Polygon erzeugt, dessen Abmessungen Tabelle B.2 des Anhangs entnommen werden können. Die Spulen bestehen aus 8 Lagen. Sie haben einen Innendurchmesser von 14,2 mm und eine Höhe von 27 mm. Bei einem Drahtdurchmesser von 1 mm ergibt das 216 Wicklungen pro Spule. Der Abstand gegenüberliegender Kernspitzen beträgt 2 mm, zum benachbarten Kernabschluss sind es 1 mm. Diese Geometrie ist das Ergebnis der Variation der Kernhöhe und -breite, der Spulenlänge und -lagenzahl, des Abstands der Kernspitzen zueinander sowie des Winkels zwischen äußerem Kernende und Kernspitze. Auch wurden verschiedene Geometrien als Kernabschluss ausprobiert und optimiert. Die Variationen und Optimierungen des Modells erfolgten immer unter Berücksichtigung von Gleichung 3.1. Alle Simulationen wurden mit dem iterativen FGMRES-Löser berechnet.

Als Referenz wurde der Betrag der magnetischen Flussdichte entlang der senkrechten Symmetrieachse, siehe Abbildung 3.8, sowie die Verteilung selbiger in der Ebene im Abstand von 2 mm zum obersten Punkt der Kerne, siehe Abbildung 3.9, bei zwei aktivierten Spulen am selben Kern betrachtet. In diesem Abstand, 0,0345 m auf der z-Achse, befindet sich das NV-Zentrum auf der Symmetrieachse. Die Stromrichtung in den Spulen ist so definiert, dass sich die Felder im Kern addieren. Aus der maximalen Stromstärke von 2,35 A ergibt sich am Ort des NV-Zentrums eine maximale magnetische Flussdichte von 783 Gauß. Auf der Symmetrieachse des Magneten entspricht dieser Wert sowohl dem Betrag, als auch der x-Komponente der magnetischen Flussdichte. In der Simulation erzeugt der zweite Kern mit seinen zwei Spulen dieselbe magnetische Flussdichte, nur dass dieses Feld auf der Symmetrieachse ausschließlich eine y-Komponente besitzt. In der Fertigung wurden die zwei Spulen des größeren Kerns



Abbildung 3.7.: Optimierte Geometrie des Modells aus Comsol mit den zwei ineinander gesetzten Eisenkernen (grau) und den jeweils zwei umgebenen unabhängigen Spulen (braun). Integriert ist ein vergrößerter Ausschnitt der Kernabschlüsse.

6 mm länger gewählt. Das bedeutet, dass durch die Einstellung der Stromstärke der Spulen die magnetische Flussdichte bis zu einem Wert von 553 Gauß und dessen Richtung in der Ebene beliebig erzeugt werden können. Dazu muss nur einmal die senkrechte Symmetrieachse des Elektromagneten mittels des XYZ-Verschiebetischs entlang der Rotationssymmetrieachse des Objektivs mit einem Abstand von 2 mm vom Fokus positioniert werden.

In Abbildung B.1 ist der hergestellte Magnet zu sehen. Die Kerne sind in der hauseigenen Werkstatt aus Weicheisen mit nicht bekannten Materialkennwerten hergestellt. Der Elektromagnet wurde bisher auf seine Funktion geprüft, doch konnten die simulierten Eigenschaften bisher nicht verifiziert werden. Dieser Schritt steht noch aus. Beim Vergleich ist zu beachten, dass die Wicklung der Spulen nicht professioneller Natur ist. Bis zur Integration in den Implantationsaufbau muss zum Beispiel ein perfekt geeignetes Kernmaterial gesucht werden. Da der Magnet vorerst am ODMR-Messplatz an Luft betrieben wird und im Modell die Wärmeabfuhr durch die Kerne und die Halterung nicht berücksichtigt wird, ist es sicher möglich Stromstärken von 4 bis 5 A zu verwenden



Abbildung 3.8.: Vergrößerter Ausschnitt des Betrags der magnetischen Flussdichte in der Einheit Gauß (G) auf der senkrechten Symmetrieachse des Elektromagneten bei zwei aktiven Spulen eines Kerns mit 2,35 A.



Abbildung 3.9.: Vergrößerter Ausschnitt des Betrags der magnetischen Flussdichte in der Einheit Gauß (G) in der Ebene bei z = 0,0345 m (entspricht 2 mm Abstand zum NV-Zentrum). Es sind nur zwei Spulen eines Kerns mit 2,35 A aktiv.

und somit magnetische Flussdichten im Bereich der Nullfeldaufspaltung zu erzeugen.

3.2.4. Experimentsteuerung

Es existiert eine arbeitsgruppeneigene Softwarelösung zur flexiblen experimentbezogenen Implementierung und Gestaltung der Experimentsteuerung. Auf Basis der Programmiersprache C++ ermöglicht das Master Control Progam (MCP) auf einer Oberfläche per Knopfdruck Messroutinen und einzelne Methoden auszuführen sowie Wahrheitswerte zu setzen. Auch lassen sich den Methoden beziehungsweise Routinen Werte mitgeben, wie zum Beispiel Startwerte, Zeitschritte, oder Abbruchkriterien. Es können beliebige Bibliotheken, zum Beispiel die von Hardwarekomponenten des Setups eingebunden werden. Das MCP ermöglicht eine beliebige Gestaltung der Oberflächen mehrerer Tabs. Auf dieser Oberfläche können die Steuerelemente, Methoden inklusive Mitgabewerte und mehrerer Visualisierungsmöglichkeiten von zum Beispiel Messergebnissen angeordnet werden. Zur Ergebnisanzeige kann ein einzelner Wert, ein zwei- oder ein dreidimensionales Array erzeugt werden. Drei Ausschnitte solcher Oberflächen werden in Abbildung 3.10 gezeigt. Die zwei Bilder zeigen jeweils farblich kodiert die positionsabhängige Fluoreszenzintensität einer Schnittfläche des Diamanten. In der Liniendarstellung ist die Fluoreszenzintensität in Abhängigkeit von der Mikrowellenfrequenz zusehen. Zur Experimentsteuerung gehören auch das Speichern und die Verarbeitung von Messwerten und dazugehörigen Einstellungen. Dies lässt sich ebenfalls problemlos implementieren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden auf Gerätebibliotheken basierende, ausführbare Befehle geschrieben, die als Schnittstelle zur Mikroskop-Software verwendet werden. So ist eine Einbindung des benötigten Funktionsumfangs der Nanopositioniersysteme, wie auch des Mikrowellensignalgenerators in die Steuerungssoftware möglich. Es wurden ein ein- und zweidimensionaler Gauß-Fit auf der Basis der GSL-Bibliothek³ und die zusätzlich für die automatische Refokussierung eines NV-Zentrums notwendigen Routinen programmiert. Des Weiteren wurden eine ODMR-Messroutine und Sequenzen zur zeitlich synchronisierten Erzeugung von TTL-Pulsen vom FPGA für die Messung der Rabioszillation, der Ramsey-Sequenz und des Hahn Echos geschrieben.

³ http://www.gnu.org/software/gsl/



Abbildung 3.10.: Ausschnitte der MCP-Oberfläche. Links: Mikroskop-Tab mit Methoden zur positionsabhängigen Fluoreszenzmikroskopie und ein aufgenommenes Bild, rechts oben: selber Tab mit einem vergrößerten Ausschnitt des linken Bildes, rechts unten: ODMR-Tab mit Methode zur Vorgabe der Messparameter einer ODMR-Messung, daneben ein Frequenzabhängiges Fluoreszenzspektrum, welches Zeeman-Aufspaltung des Zustands $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm s}=\pm1\rangle$ zeigt.

4

Experimente und Ergebnisse

Die durchgeführten Experimente mit ihren Ergebnissen können in drei Kategorien unterteilt werden. Der erste Abschnitt dieses Kapitels beschäftigt sich hauptsächlich mit der Charakterisierung des konfokalen Fluoreszenzmikroskops, wie der Auflösung, der Fluoreszenzcharakteristik von NV-Zentren und der zeitlichen Stabilität des Setups. Der zweite Abschnitt setzt sich mit den Grundzügen der ODMR von NV-Zentren auseinander. Im dritten und letzten Abschnitt wird auf gepulste Experimente eingegangen. Es werden Messungen der Rabioszillation gezeigt und die Relaxationszeiten von NV-Zentren mittels der Ramsey-Methode und des Spin-Echo-Signals bestimmt.

Die Diamantprobe, an der die gesamten nachfolgenden Messungen durchgeführt wurden, besitzt eine quadratische Oberfläche von circa 3 mm \times 3 mm und ist ungefähr 300 µm dick. Die Abbildung 4.1 zeigt eine 200 µm \times 75 µm große Fluoreszenzaufnahme eines lateralen Schnitts. Darauf ist im linken Teil ein dunkler vertikaler Bereich zu sehen. Hier befindet sich die Mikrowellenantenne, weshalb von diesem Gebiet keine Fluoreszenz detektiert werden kann. Links und rechts des Drahts sind Strukturen erkennbar, die durch die Implantation von Stickstoff entstanden sind. Es handelte sich eventuell um einen Diamanten vom Typ IIa, doch durch den hohen Stickstoffeintrag liegt nun eher ein Typ Ib vor. Um dennoch gute Fluoreszenzsignale, sprich einen geringen Untergrund verglichen mit dem Signal des NV-Zentrums bei allen Messungen zu



Abbildung 4.1.: Aufnahme der Fluoreszenzzählrate von gering (dunkelblau) bis hoch (rot). Der Draht (schwarz, da keine Fluoreszenz) verläuft senkrecht. Außerhalb der Farbskalierung sind Strukturen durch überhöhte Zählraten (weiß) mit einem Umriss sehr geringer Zählraten erkennbar.

erzielen, wurde der Bereich um das rote Rechteck an der Spitze der Struktur (rechts in Abbildung 4.1) ausgewählt. Dort befinden sich im Abstand von ungefähr 65 µm von der Mitte des Drahts einzelne NV-Zentren, oder Anhäufungen weniger NV-Zentren in einem Bereich, der insgesamt eine geringe Untergrundzählrate zeigt. Augenscheinlich würde sich der Bereich links des Drahts an der Spitze der implantierten Struktur besser eignen. Es wurde jedoch von seiner Verwendung abgesehen, da mikroskopische Aufnahmen dieses Bereichs durch den Draht noch etwas verzerrt erscheinen. Diese Verzerrung wird durch den großen Öffnungswinkel des Objektivs verursacht, da sich der Lichtkegel vor dem Objektiv mit dem Draht schneidet.

4.1. Mikroskopie

Die Charakterisierung des konfokalen Fluoreszenzmikroskops kann in erster Linie durch die Bestimmung des Auflösungsvermögens geschehen. Weiterhin spielt die Detektionseffizienz, gerade in Hinblick auf die Durchführung von ODMR-Messungen, eine wichtige Rolle. Eine schlechte Effizienz bedeutet eine höhere Wiederholungsrate von Messdurchläufen für ein ODMR-Spektrum. Sie wird über das Sättigungsverhalten einzelner NV-Zentren bestimmt. Gerade für Langzeitmessungen ist auch eine hohe Stabilität des Aufbaus gegenüber äußeren Einflüssen erforderlich. Diese Charaktermerkmale werden im Folgenden untersucht.

4.1.1. Auflösungsvermögen

Das axiale und laterale Auflösungsvermögen ist ein wesentliches Merkmal eines jeden Mikroskops. Dieser ODMR-Messplatz befindet sich an Luft, was den Einsatz eines Ölimmersionsobjektivs ermöglicht. Dieses besitzt eine numerische Apertur von NA = 1, 4. Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, führt eine höhere numerische Apertur zu einem besseren Auflösungsvermögen, sodass nach den Gleichungen 2.17 und 2.18 theoretisch eine laterale beziehungsweise axiale Auflösung von $\Delta x_{\text{theo}} \approx 196, 9$ nm beziehungsweise $\Delta z_{\text{theo}} \approx 511, 3$ nm erreicht werden kann. Dieser Berechnung wird eine Anregungswellenlänge von $\lambda_{\text{ab}} = 532$ nm und eine detektierte Wellenlänge von $\lambda_{\text{em}} = 800$ nm zugrunde gelegt.

Die Bestimmung geschieht durch einen Tiefenscan an einem NV-Zentrum und einer lateralen Aufnahme am axialen Ort des NV-Zentrums. Das bedeutet, dass in vorgegebenen Abständen entlang der axialen Komponente (z-Achse) Bilder eines NV-Zentrums in der lateralen Ebene aufgenommen wird. Bei jedem dieser Bilder wird ein zweidimensionaler Gauß-Fit durchgeführt und die Amplitude gegen die z-Achse aufgetragen. An diese Werte wird wieder eine Gauß-Funktion gefittet. Aus diesem Fit lässt sich die axiale Auflösung nach dem Rayleigh-Kriterium als das 1, 18-fache der Halbwertsbreite bestimmen. Die Abbildung 4.2 zeigt die bestimmten Amplituden der Aufnahmen aufgetragen gegen die z-Achsenposition. Durch eine weitere Messung in der lateralen Ebene an der Stelle des Maximums der Fluoreszenzintensität in axialer Richtung, lässt sich die laterale Auflösung bestimmen. Diese Aufnahme ist in Abbildung 4.3 zusammen mit der gefitteten Funktion zusehen. Es sei anzumerken, dass die maximale Zählrate aus Abbildung 4.2 etwas niedriger liegt, als die maximale Zählrate der Aufnahme aus Abbildung 4.3. Die liegt hauptsächlich an der starken Amplitudenschwankung des Anregungslasers, da diese vor den Messungen auf die Sättigungsleitung von circa 320 µW eingestellt ist.

Es ergeben sich die laterale und axiale Auflösungen von

$$\Delta x = (314, 6 \pm 0, 7) \text{ nm und}$$
(4.1)

$$\Delta z = (1165, 0 \pm 26, 8) \text{ nm.}$$
(4.2)

Diese Werte weichen um knapp 60 % beziehungsweise 128 % von der theoretisch möglichen Auflösung des konfokalen Mikroskops ab. Zu einer derart großen Abweichung können einige Faktoren beitragen. Die nicht perfekte Einkopplung in das Objektiv bewirkt einen nicht optimalen Fokus. Zudem führen minimale Fehler bei der Justage der



Abbildung 4.2.: Die Daten (blau) stellen die gefitteten Amplituden der Fluoreszenzintensität der Einzelaufnahmen gegenüber der absoluten axialen Position z dar. Aus der Halbwertsbreite des Gauß-Fits (rot) lässt sich auf die axiale Auflösung des Mikroskops schließen.

Linsen und der Lochblende vor der APD zu großen Auflösungseinbußen. Steht die Lochblende lateral nicht ideal im Fokus der ersten Linse wird ein Teil der Fluoreszenz nicht detektiert. Diese Positionierung ist jedoch einfacher zu bewerkstelligen, als die Einstellung der optimalen Position in axialer Richtung, da hier das Fluoreszenzsignal nicht sehr empfindlich auf Änderungen reagiert. Des Weiteren ist die Ausrichtung der Lochblende ein sukzessiver Prozess, der durch eine stabilere Befestigung, vielleicht sogar auf einem motorisierten Verschiebetisch, erleichtert würde. Ebenso kann eine Multimodenfaser (MMF) zu einer Steigerung der registrierten Fluoreszenz und damit zu einer Verbesserung der Auflösung führen. Wird die Linse hinter der Lochblende nicht perfekt justiert, so sammelt sie das Licht nicht optimal auf und kann es nicht perfekt auf den empfindlichen Bereich der APD fokussieren. Allgemein muss für dauerhaft höher auflösende Mikroskopie die Stabilität des Detektionswegs erhöht werden, um eine schnelle Dejustage der Komponenten zu vermeiden. Dafür spricht, dass mit dem selben Aufbau bereits eine laterale Auflösung von $(264, 2 \pm 2, 0)$ nm gemessen wurde, ohne die axiale Position zuvor zu bestimmen. Das zeigt, dass eine optimale Ausrichtung zu einer noch besseren Auflösung führen kann, die sich jedoch mit der Zeit wieder ver-



Abbildung 4.3.: Oben: gemessene Zählrate der Fluoreszenz bei Scannen der lateralen Ebene (xy-Ebene) an axialer Position mit maximaler Zählrate; unten: dieselben Messwerte, zusammen mit der Fitfunktion aus deren Halbwertsbreite sich die laterale Auflösung ergibt. Hier ist eine sehr gute Übereinstimmung zu erkennen.

schlechtert. Da die erreichte Auflösung für das Auffinden und die Detektion optischer Resonanz von NV-Zentren völlig ausreicht, konnte der Schwerpunkt dieser Arbeit, das Errichten eines ODMR-Messplatzes weiter verfolgt werden. Zukünftig muss jedoch eine drastische Verbesserung des Auflösungsvermögens, vor Allem im Hinblick auf die Detektion zuvor implantierter NV-Zentren, erfolgen. Dafür ist es jedoch notwendig eine Auflösung unterhalb des Beugungslimits zu erreichen, um auch noch Farbzentren mit wenigen Nanometern Abstand auflösen zu können. Hierfür kann das in [Wol12] bereits am Vakuum-Setup verwendete GSD-Verfahren am ODMR-Messplatz eingesetzt werden.

4.1.2. Detektionseffizienz und Sättigungsverhalten

Ein weiteres Merkmal eines Fluoreszenzmikroskops ist die Detektionseffizienz. Bei NV-Zentren in *Festkörperimmersionslinsen* (solid immersion lens, SIL) wurde bereits eine Sättigungsstreurate von 1,0 $\frac{\text{MCounts}}{\text{s}}$ gemessen [JGR⁺14]. Hier wurde direkt aus dem Diamanten eine kleine Linse herausgearbeitet, bei der sich mittig ein NV-Zentrum befindet. Damit kann der Raumwinkel, aus dem die Fluoreszenz gemessen wird, vergrößert werden.

Um die Sättigungsstreurate des in der Arbeit errichteten Aufbaus zu bestimmen, wird jeweils bei den vier in Abbildung 4.4

markierten NV-Zentren oder Anhäufungen solcher die maximale Fluoreszenzintensität in Abhängigkeit von der anregenden Laserleistung bestimmt. Zur Bestimmung dieser Intensität kann wieder der zweidimensionale Gauß-Fit an einer lateralen Aufnahme eines Farbzentrums herangezogen werden. Handelt es bei dem mikroskopierten Objekt nicht um zum Beispiel Dreck, sondern um einen oder mehrere Einzelphotonenemitter, wie das NV-Zentrum einer ist, so ist zu höheren Laserleitungen ein sättigendes Verhalten der Fluoreszenzintensität gemäß

$$I(P) = I_{\infty} \frac{P/P_{\rm S}}{1 + P/P_{\rm S}} \tag{4.3}$$

erkennbar. Dabei ist P die Pumpleistung, gemessen direkt vor dem Objektiv, I_{∞} die Sättigungszählrate und $P_{\rm S}$ die Sättigungsleistung. Die Sättigungsleistung ist diejenige Laserleistung, bei der die Hälfte der Sättigungszählrate erreicht ist. Die Fluoreszenzintensität des Untergrunds sollte hingegen kein Sättigungsverhalten, sondern einen linearen Verlauf zeigen. Wie in Abbildung 4.5 zu sehen, handelt es sich mit großer Wahrscheinlichkeit bei den vier markierten helleren Fluoreszenzstellen aus Abbildung 4.4 um einzelne NV-Zentren. Dies ist anzunehmen, da sich die Pumpleistungen (siehe



Abbildung 4.4.: Laterale Aufnahme der Größe 9,9 µm × 12,5 µm mit einer Auflösung von 50 nm pro Pixel mit vier markierten NV-Zentren zur Identifikation bei durchgeführten Messungen. Dunkelblau bedeutet wenig und rot viel Fluoreszenz. Weiße Bereiche stellen so viel Fluoreszenz dar, dass sie außerhalb der Farbskalierung liegt.

Tabelle 4.1) im Vergleich zur Verwendung des selben Aufbaus mit dem Objektiv mit NA = 0,95 in [Wei11] stark ähneln. Dort wurde für ein einzelnes NV-Zentrum eine Sättigungsleistung von $P_{\rm S} = (354 \pm 33)$ µW gemessen. Es fällt jedoch auf, dass die in Tabelle 4.1 gelisteten Sättigungszählraten fast doppelt so hoch liegen, verglichen mit $I_{\infty} = (58 \pm 1) \frac{\text{kCounts}}{\text{s}}$ bei Verwendung des Objektivs mit der NA von 0,95. Dies zeigt deutlich den Vorteil der höheren NA von 1,4 des Ölimmersionsobjektivs, da durch den größeren Brechungsindex, bei annähernd gleichem Öffnungswinkel, vom Objektiv mehr Photonen aufgesammelt werden. Es ist bei allen vier NV-Zentren die klare Charakteristik eines Einzelphotonenemitters erkennbar und der Untergrund zeigt wie erwartet einen linearen Anstieg mit der anregenden Laserleistung. Vor allem der Untergrund des NV 3 steigt deutlich stärker. Das liegt, wie in Abbildung 4.4 zu sehen, daran, dass sich dieses nicht in einer so dunklen Umgebung, beziehungsweise einer Umgebung mit ge-



Abbildung 4.5.: Sättigungsverhalten der detektierten Zählraten der vier NV-Zentren bei Erhöhung der anregenden Laserleistung. Die durchgezogenen Linien zeigen die nach Gleichung 4.3 gefitteten Funktionen. Die gepunkteten Geraden-Fits zeigen die ansteigende Zählrate des Untergrunds mit der Pumpleistung des Lasers ohne Sättigungsverhalten.

ringerem NV-Zentren-Vorkommen, wie die anderen drei NV-Zentren befindet. Aus den Fits der Daten mit der Gleichung 4.3 ergeben sich die in Tabelle 4.1 gelisteten Werte.

Würden sich in einem gerade noch auflösbaren Detektionsvolumen mehrere NV-Zentren befinden, so würde man bei der Messung der Sättigungsstreurate Vielfache der hier ermittelten Raten messen und könnte so Rückschlüsse auf die Anzahl ziehen. Setzt man die Sättigungsstreurate wie sie in einer SIL gemessen wurde als das experimentell maximal Erreichbare, so folgt eine mittlere Effizienz der Detektion von Photonen des OMDR-Messplatzes von

$$E = (11, 3 \pm 0, 7) \%. \tag{4.4}$$

Das ist fast das Zweifache der Effizienz von $E = (5, 8 \pm 0, 1)$ %, die mit dem Objektiv des Implantationsaufbaus erreicht wurde [Wei11]. Die Detektionseffizienz ist durchaus als realistische einzuschätzen. Ein Grund ist, dass das Objektiv trotz größerer NA nur aus ungefähr 30 % des gesamten Raumwinkels Photonen aufsammelt. Auch muss die

im Datenblatt mit nur circa 50 % angegebene Detektionseffizienz der APD für die Wellenlängen das Emissionsspektrum bedacht werden. Allein aus diesen beiden Werten ergibt sich eine Detektionswahrscheinlichkeit von $E \approx 15$ %. Die weiteren 4 % gehen durch die nicht perfekte Justage aller Komponenten, die nicht perfekt reflektierenden Spiegel und die nicht perfekt durchlässigen Linsen und Filter verloren.

	$\mathbf{P_S} \ [\mu \mathbf{W}]$	$\mathbf{I}_{\infty} \left[rac{\mathrm{kCounts}}{\mathrm{s}} ight]$
NV 1	319 ± 29	120 ± 5
NV 2	354 ± 39	112 ± 6
NV 3	399 ± 44	101 ± 6
NV 4	508 ± 80	119 ± 11

Tabelle 4.1.: Ermittelte Sättigungsleistung und Sättigungsintensität der NV-Zentren

4.1.3. Stabilität des Aufbaus

Die Stabilität eines Aufbaus gegenüber äußeren Einflüssen, wie zum Beispiel der Temperatur ist neben seiner Auflösung und Detektionseffizienz ebenfalls ein wichtiges Merkmal. Hier ist vor allem die Positionsänderung eines NV-Zentrums über einen langen Zeitraum hinweg von Bedeutung. Nach dieser Kenntnis lassen sich Fehler von Langzeitmessungen einschätzen und Maßnahmen zu deren Vermeidung ergreifen. Um ein Indiz für die Stabilität zu bekommen, wurde über einen Zeitraum von zwei Wochen die laterale und axiale Position von NV 1 ermittelt. Es wurde jeweils eine Messung am Morgen und eine am Abend durchgeführt. Morgens war vor der Messung sowohl der Laser, als auch die Mikrowelle ausgeschaltet. Abends wurde die Messung direkt im Anschluss an die letzte ODMR-Messung getätigt, sodass eventuelle Erwärmungen durch permanente Bestrahlung durch den Laser und der Mikrowelle registriert werden können. Dabei ist ein viel größerer Einfluss durch den Ausfall der Klimaanlage im Labor hinzugekommen. Die Temperatur schwankte zwischen $T_{\rm M}\approx 22~^\circ\mathrm{C}$ am Morgen und circa $T_{\rm A} \approx 27$ °C am Abend, bei zeitweiligen Spitzentemperaturen von $T_{\rm max} \approx 30$ °C. Die zwischen nachts und tagsüber schwankenden Außentemperaturen, aber auch durch die Laborgeräte verursachte Wärme trugen ihren Teil dazu bei.

Im Mittel waren die Positionen um

$$\begin{pmatrix} \delta \bar{x} \\ \delta \bar{y} \\ \delta \bar{z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 588 \pm 333 \\ 292 \pm 43 \\ -528 \pm 378 \end{pmatrix}$$
 nm (4.5)

von morgens zu abends verschoben. Allerdings fallen die gemittelten Positionsunterschiede noch gering aus, verglichen mit der Differenz aus dem Maximum und Minimum der absoluten Positionen von jeweils dem kalten Zustand am Morgen und dem warmen Zustand am Abend. Dies spiegelt auch den großen Fehler der Werte aus Gleichung 4.5 wieder. Die gemessenen Positionen lagen in einem Bereich von

$$\begin{pmatrix} x_{\max} - x_{\min} \\ y_{\max} - y_{\min} \\ z_{\max} - y_{\min} \end{pmatrix} = \begin{cases} \begin{pmatrix} 3443 \pm 1 \\ 1015 \pm 10 \\ 926 \pm 5 \end{pmatrix} \text{ nm morgens} \\ \begin{pmatrix} 1886 \pm 10 \\ 883 \pm 10 \\ 1892 \pm 29 \end{pmatrix} \text{ nm abends} \end{cases}$$
(4.6)

Diese breite Streuung kann durch etwaige Arbeiten am Tisch, auf dem die Optik aufgebaut ist, erklärt werden. Die Differenz der mittleren Position zwischen dem kalten und warmen Zustand kann jedoch durch die Temperaturschwankungen zustande kommen. Nach einer Erneuerung der Laborklimaanlage lassen sich dieser Sachverhalt und die etwaige Auswirkung der Wärmeentwicklung durch den Laser und die Mikrowelle auf die Position eines NV-Zentrums genauer verifizieren. Bis dahin ist es bei Messungen, die lange dauern notwendig, sie in kleinere Abschnitte zu unterteilen und zwischen diesen eine Refokussierung des NV-Zentrums vorzunehmen. Andernfalls kann es zu Schwankungen der Fluoreszenzzählrate aufgrund eines Drifts des Farbzentrums durch den Fokus bis hin zu einem vollständigen Verschwinden des Signals während einer Messung kommen.
4.2. ODMR

Im vorherigen Kapitel wurde gezeigt, dass das Konfokalmikroskop eine gute Detektionseffizienz für die Fluoreszenzphotonen von NV-Zentren besitzt und einzelne Farbzentren klar ausfindig machen kann. In diesem Kapitel wird nun untersucht, wie gut die optische Detektion der magnetischen Resonanz des Elektronenspins durch die Ergänzung der Mikrowellenanregung funktioniert. Es werden die Nullfeld-Aufspaltung, die Zeeman-Aufspaltung in einem externen Magnetfeld und die daraus resultierende Larmor-Präzession, sowie die Aufspaltung durch das kristalline Spannungsfeld mittels ODMR-Spektren ermittelt. Zusätzlich werden die Robustheit des ODMR-Messplatzes bezüglich der Magnetfeldvermessung überprüft und geeignete Parameter für weitere Messungen bestimmt.

4.2.1. Nullfeld-Aufspaltung

Die erste optische Detektion magnetischer Resonanz soll die Resonanzfrequenz der Nullfeldaufspaltung des Grundzustands messen. Wie in Kapitel 2.4.1 beschrieben, ist die Fluoreszenz des NV-Zentrums abhängig vom magnetischen Unterzustand in dem es sich befindet. Um diesen Fluoreszenzunterschied zu messen, wird das Farbzentrum kontinuierlich vom Laser der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm in $m_{\rm S} = 0$ des Grundzustands gepumpt. Gleichzeitig wird Mikrowelle einer gewissen Frequenz eingestrahlt und die Fluoreszenzzählrate bei dieser Frequenz aufgenommen. So wird ein Frequenzintervall in vorgegebenen Frequenzschritten durchlaufen und zu jeder Frequenz die Zählrate bestimmt. Wird die Mikrowelle mit einem Übergang resonant, wird ein Rückgang der Fluoreszenz von bis zu 30 % detektiert. Jede ODMR-Messung besteht aus direkten Wiederholungen der beschriebenen Prozedur und anschließender Mittelung der Zählraten je Frequenz, bis die Schwankung der Fluoreszenz außerhalb des Resonanzbereichs unter circa 5 % liegen. Dadurch führt die Intensitätsschwankung des Lasers nicht unmittelbar zu schlechten Messungen. Für gewöhnliche ODMR-Messungen hat sich bei diesem Setup eine Messzeit von 5 bis 10 ms pro Frequenz und drei Wiederholungen für ausreichend erwiesen.

Abbildung 4.6 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung ohne Magnetfeld. Es ist ein klarer Rückgang der Fluoreszenzzählrate im Bereich der Nullfeldaufspaltung zu erkennen. Der Fit durch eine Lorentz-Funktion ergibt wie erwartet einen Rückgang der Zählrate von $(29, 4\pm 2, 7)$ %. Weiterhin ergibt sich eine Resonanzfrequenz der Nullfeldaufspaltung aus der Position des Peaks bei $(2871, 6\pm 0, 3)$ MHz mit einer Halbwertsbreite des Peaks von $(17, 9\pm 1, 0)$ MHz. Eine größere Anzahl an Wiederholungen eines Messdurchgangs, sowie eine geringere Mikrowellenleistung können den Peak schärfen. Da zum Beispiel das kristalline Spannungsfeld für eine kleine, hier jedoch nicht auflösbare Aufspaltung sorgt, ist die Linienbreite durch die Relaxationszeit der beiden Übergänge zuzüglich dieser Aufspaltung begrenzt.



Abbildung 4.6.: Die OMDR-Messung an NV1 zeigt die Nullfeldaufspaltung und wurde mit einer Lorentzfunktion (rot) gefittet. Die relative Zählrate als Normierung der Zählrate auf den Mittelwert der außerhalb des Peaks liegenden Zählrate ist in Abhängigkeit von der Mikrowellenfrequenz dargestellt.

4.2.2. Aufspaltung durch das kristalline Spannungsfeld

In 2.2.3 wurde die Aufspaltung durch ein kristallines Spannungsfeld im Diamanten vernachlässigt und E = 0 gesetzt. Die Abbildung 4.7 zeigt zwei Fluoreszenzminima symmetrisch um die Nullfeldaufspaltungsfrequenz. Diese Messung wurde ohne ein Magnetfeld aufgenommen, sodass es sich ausschließlich um die Aufspaltung durch ein kristallines Spannungsfeld handelt. Dieses hebt die Entartung des Zustands $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = \pm 1\rangle$ auf. Es entsteht eine Differenz von $\Delta \nu = (10, 64 \pm 0, 03)$ MHz zwischen den Übergängen $m_{\rm S} = 0 \leftrightarrow m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = 0 \leftrightarrow m_{\rm S} = +1$. Das bedeutet, dass der Parameter des kristallinen Spannungsfelds für das NV 2 $E \approx 10, 6$ MHz gesetzt werden kann. Dieser Wert liegt im gewöhnlichen Bereich, wie auch aus [Jah12] hervorgeht. Um einen aussagekräftigen Wert für das Spannungsfeld zu bekommen, müssen diese Messungen an mehreren NV-Zentren durchgeführt werden.



Abbildung 4.7.: Die ODMR-Messung an NV 2 zeigt die symmetrische Aufspaltung um 2,87 GHz durch das kristalline Spannungsfeld des Diamanten. Der Fit(rot) zeigt zwei Lorentz-Peaks.

4.2.3. Zeeman-Aufspaltung

Ist der in Kapitel 3.2.3 beschriebene Permanentmagnet über dem Diamanten platziert und dieselbe Messung ein zweites Mal durchführt, wird die Zeeman-Aufspaltung des $m_{\rm S} = \pm 1$ Zustands beobachtet. Die Abbildung 4.8 zeigt die Rückgänge der Fluoreszenz bei den Resonanzfrequenzen der Übergänge $m_{\rm S} = 0 \iff m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = 0 \iff m_{\rm S} = +1$. Durch den Fit einer doppelten Lorentz-Funktion ergibt sich die Resonanzfrequenz des ersten Übergangs bei der Position des Peaks (2769, 2±0, 3) MHz und die des zweiten bei der Position des Peaks (3008, 6±0, 3) MHz. Die Halbwertsbreiten betragen (11, 3±0, 9) MHz und (12, 7±1, 0) MHz bei einem Rückgang der Fluoreszenzzählrate von $(17, 7 \pm 2, 4)$ % und $(17, 8 \pm 2, 4)$ %. Gegenüber der Halbwertsbreite des Peaks der Nullfeldaufspaltung sind diese Peaks deutlich schmaler und bis zur absoluten Grenze der Linienbreite durch die Kohärenzzeit nur noch durch die Leistung der Mikrowelle begrenzt. Auch ist zu erkennen, dass der Rückgang der Zählrate keineswegs mehr bei ungefähr 30 % liegt. Das kann zum einen am Magnetfeld, welches nicht entlang der NV-Zentren-Achse ausgerichtet ist und damit eine Dämpfung der Oszillation des Übergangs verursacht, zum anderen an einer eventuell bei dieser Messung höheren Laserintensität liegen. Die Laserintensität wurde zu Beginn der Messungen auf ungefähr 250 µW eingestellt, doch wurden schon Schwankungen und Sprünge der Laserintensität um bis zu 80 µW beobachtet. Das Magnetfeld, welches am Ort des NV-Zentrums vorliegt und dessen Winkel zur NV-Achse werden durch die Gleichungen 2.23 und 2.24 berechnet. Es ergibt sich ein Betrag der magnetischen Flussdichte von $(80, 4\pm 0, 5)$ Gauß und ein Winkel von $(57, 8\pm 0, 1)^\circ$. Daraus resultiert eine magnetische Flussdichte von $B_{\parallel} \approx 42,8$ Gauß, die für die Aufspaltung von ungefähr 239,4 MHz zwischen den Zuständen $m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = +1$ verantwortlich ist. Ist das Magnetfeld perfekt entlang der Achse des NV-Zentrums ausgerichtet, so spalten die Zustände symmetrisch um die Frequenz der Nullfeldaufspaltung auf. Liegt, wie hier, eine orthogonale Magnetfeldkomponente vor, so verschiebt sich die Frequenz, um die symmetrisch aufgespalten wird.

Für eine bessere Auflösung der Linienbreite gibt es die Möglichkeit der gepulsten ODMR-Messung. Im einfachsten Fall polarisiert der Laser den Zustand des NV-Zentrums in den Zustand $m_{\rm S} = 0$, anschließend wird ein π -Puls der Mikrowelle einer gewissen Frequenz eingestrahlt und danach der Fluoreszenzrückgang detektiert. Bei einer Wiederholung der Messung mittels gepulster ODMR, sollte ein ODMR-Spektrum mit höherer Auflösung herauskommen, sodass zum Beispiel die beiden Peaks aus Abbildung 4.8 eine weitere Aufspaltung, wie in Kapitel 2.2.4 beschrieben, erfahren. Damit kann unterschieden werden, ob das NV-Zentrum aus der Fehlstelle und ¹⁴N oder ¹⁵N besteht. Für die gepulste ODMR-Messung ist jedoch die Kenntnis der Rabifrequenz nötig, um daraus die Länge des π -Pulses zu bestimmen. Wie in Kapitel 3.2 beschrieben, erlaubt das vorhandene Setup eine solche Messung nicht, da hierzu eine Automatisierung der zeitaufgelösten Messung der Fluoreszenz nötig ist.

Um die Gleichungen 2.23 und 2.24 zur Berechnung der magnetischen Flussdichte und deren Winkel zur NV-Achse aus den Resonanzfrequenzen der Übergänge $m_{\rm S} = 0 \iff m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = 0 \iff m_{\rm S} = +1$ zu überprüfen, wird der Permanentmagnet in



Abbildung 4.8.: Die OMDR-Messung an NV1 zeigt die Zeeman-Aufspaltung und wurde mit einer doppelten Lorentz-Funktion (rot) gefittet. Die relative Zählrate ist in Abhängigkeit von der Mikrowellenfrequenz dargestellt.

beliebige Positionen gebracht und jeweils die ESR gemessen. Mit den beiden Resonanzfrequenzen der ODMR-Spektren wird nach den Gleichungen 2.23 und 2.24 die parallele Komponente der magnetischen Flussdichte bestimmt und gegen die Frequenzdifferenz der Resonanzen aufgetragen. Wie in Abbildung 2.5 dargestellt, ist durch die Zeeman-Aufspaltung ein linearer Zusammenhang zwischen der Aufspaltungsfrequenz und der magnetischen Flussdichte zu erwarten. Die Aufspaltungsfrequenz entspricht dabei dem Doppelten der Larmor-Frequenz des Elektronenspins. Die Abbildung 4.9 zeigt die Aufspaltungsfrequenz in Abhängigkeit von den aus den Messungen errechneten Werten für die magnetische Flussdichte. Aus dem Geradenfit ergibt sich eine Nullfeldaufspaltung von $(0, 58 \pm 0, 19)$ MHz, welche sich durch ein kristallines Spannungsfeld erklären lässt. Um diesen Sachverhalt genauer zu ergründen, bedarf es einer höher aufgelösten Messung im Bereich sehr kleiner bis verschwindender Magnetfelder, da aus einer sehr kleinen Aufspaltung ein Überlapp der Peaks der zwei Resonanzfrequenzen folgt. Hier wird der Fit durch eine Lorentz-Funktion der Frequenzen erschwert und ab einem gewissen, sehr kleinen Magnetfeld sind die zwei Peaks nicht mehr als solche zu identifizieren. Zur Erinnerung sei erwähnt, dass der Peak der Nullfeldaufspaltung eine deutlich größere Halbwertsbreite als die Einzelpeaks bei deutlicher Zeeman-Aufspaltung besitzt. Der Geradenfit ergibt weiter eine Geradensteigung von $(5,585 \pm 0,004) \frac{\text{MHz}}{\text{Gauß}}$ welche halbiert, zwar nicht im Rahmen des Fehlers, doch mit der geringen Abweichung von 0,3% mit dem gyromagnetischen Verhältnis $\gamma_{\text{e}} \approx 2,8 \frac{\text{MHz}}{\text{Gauß}}$ des Elektrons übereinstimmt. Da hier die Larmor-Präzession des Elektronenspins gemessen und der Proportionalitätsfaktor zwischen Larmor-Frequenz und Magnetfeld verifiziert wird, können die Gleichungen 2.23 und 2.24 weiterhin zur Berechnung des magnetischen Flusses und dessen Winkel zur NV-Achse herangezogen werden.



Abbildung 4.9.: Aus den ODMR-Messungen errechnete Parallelkomponenten der magnetischen Flussdichte aufgetragen gegen die Aufspaltungsfrequenz zwischen den Zuständen $m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = +1$. Der Geradenfit (rot) verdeutlicht nochmals den linearen Zusammenhang. Die Fehler sind so gering, dass die Fehlerbalken nur ansatzweise zu erkennen sind.

Noch genauer ließe sich der Zusammenhang zwischen magnetischer Flussdichte und Larmor-Frequenz messen, in dem eine orthogonale Komponente des Magnetfelds vermieden wird. Doch das sukzessive Verfahren zur Einstellung des Magnetfelds erlaubt es kaum in vertretbarem Zeitaufwand eine gewünschte Feldstärke mit ausschließlich paralleler Komponente einzustellen. Jede kleine manuelle Positionsänderung des Magneten durch den XYZ-Mikrometerverschiebetisch bewirkt eine teilweise enorme Änderung des Winkels und der Feldstärke. Nach jeder Positionsänderung muss ein ODMR aufgenommen und daraus die entsprechende Flussdichte und dessen Ausrichtung errechnet werden. Eine automatische Positionierung des Magneten, oder der entworfene Elektromagnet können zusammen mit einem direkten Lorentz-Fit an den aufgenommenen ODMR-Spektren eine deutlich schnellere Ausrichtung bewirken. Dazu sollte jedoch ebenfalls die Dauer einer ODMR-Aufnahme verkürzt werden. Diese Zeit einer Aufnahme ergibt sich aus der notwendige Messdauer der Fluoreszenzzählrate bei einer Mikrowellenfrequenz von 5 – 10 ms, der 1000 fache Wiederholung für ein entsprechend genaues Frequenzspektrum und der mindestens dreimaligen Wiederholung dieser Messung zusammen mit den Reaktionszeiten des Mikrowellensignalgenerators beziehungsweise seiner Kommunikation zu einigen Minuten. Wie jedoch in der Theorie erwähnt, ist im Bereich kleiner Magnetfelder keine perfekte Ausrichtung parallel zur NV-Symmetrieachse notwendig.

Durch die bisherige Möglichkeit der Bestimmung der Resonanzfrequenzen auf wenige Megahertz genau, kann mit dem aktuellen Aufbau ein vorhandenes Magnetfeld auf wenige Gauß genau bestimmt werden. Um die Auflösung des Magnetfelds drastisch zu verbessern, kann die Genauigkeit der Messungen durch die Verwendung gepulster ODMR-Messungen erhöht werden. Gepulste Messungen, wie die des Spin-Echos lassen schließlich eine noch genauere Bestimmung des Magnetfelds zu.

4.2.4. Magnetfeldvermessung

Nachdem die Zuverlässigkeit der ODMR-Messung bezüglich der Bestimmung des Magnetfelds gezeigt wurde, soll nun das Magnetfeld des Permanentmagneten räumlich vermessen werden. Für reproduzierbare Ergebnisse ist der XYZ-Verschiebetisch, der aus drei manuellen Positionierern mittels Mikrometerschraube besteht, auf Anschlag an einige Winkel neben dem Mikroskoptisch befestigt. Die Position wird so gewählt, dass sich der am Verschiebetisch befindliche Permanentmagnet mittig oberhalb des Diamanten befindet und die Mikrometerschrauben, die einen Stellweg von 25 mm aufweisen, bei circa 12,5 mm stehen. Die x-Achse wird parallel zum koplanaren Streifen, entgegen der Leitungsrichtung gewählt. Entlang dieser Achse verläuft auch die längere Seite des Magneten. Die y-Achse befindet sich ebenfalls in der Ebene des koplanaren Leiters orthogonal zur x-Achse entgegen der Blickrichtung von rechts unten nach links oben in Abbildung 3.3. Die z-Achse verläuft senkrecht nach unten. Es werden jeweils eine Ebene bei z = 0 mm, 12,5 mm und 25 mm in 5 mm Schritten in x-, sowie in y-Richtung abgerastert und an jeder Position eine ODMR-Messung mit 10 Wiederholungen eines Frequenzintervalldurchlaufs durchgeführt. Die maximale z-Position entspricht einem ungefähren Abstand des Magneten von 25 mm zum Wellenleiter. Da dieser Abstand nur sehr ungenau bestimmt werden kann, wird im Folgenden der Fehler der Mikrometerstellschrauben von 1 µm nicht berücksichtigt. Ist der minimale Abstand 25 mm, so befinden sich die drei Ebene in einem Abstand von circa 25, 37,5 und 50 mm vom Magneten. Mit Hilfe der Gleichungen 2.23 und 2.24 wird aus jeder Messung die magnetische Flussdichte am Ort des NV-Zentrum bestimmt und gegen ihre xund y-Komponenten aufgetragen. So entstehen die drei in Abbildung 4.10 dargestellten Plots. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die magnetische Flussdichte bei Annäherung an das NV-Zentrum erhöht. Dies geschieht jedoch nicht linear. Werden die Werte der magnetischen Flussdichte entlang der parallel zur z-Achse verlaufenden Geraden bei x, y = 10 mm gegen den Abstand r zum Wellenleiter aufgetragen, kann durch ein Fit mit dem Bestimmtheitsmaß von $R^2 \approx 0.999$ die $\frac{1}{r}$ -Abhängigkeit der magnetischen Flussdichte gezeigt werden. In größerer Entfernung scheint die magnetische Flussdichte in der Ebene überall fast gleich zu sein. In der Abbildung 4.10 ist im mittleren Plot zur positiven y-Achse eine Abschwächung des Magnetfelds zu erahnen. Der unterste Plot zeigt deutlich ein höheres Magnetfeld in der Mitte des y-Achsenintervalls verglichen mit den Werten bei 0 mm beziehungsweise 25 mm. Entlang der x-Komponente scheint sich das Magnetfeld kaum zu ändern. Dieses Verhalten ist durch die Asymmetrie des Magneten zu erklären. Dieser besitzt eine schmale und eine breite Seite. Während das Magnetfeld entlang der breiten Seite in einem größeren Bereich eine gleiche Flussdichte aufweisen sollte, so müsste diese entlang der schmalen Seite deutlich schneller zu den Seiten hin abfallen. Da der Magnet mit seiner breiten Seite parallel zur x-Achse und mit seiner schmalen parallel zur y-Achse ausgerichtet ist, spiegelt sich die Erwartung in den Messwerten wieder.

Für eine exakte Vermessung des Permanentmagneten müssen deutlich mehr Ebenen mit jeweils mehr Messpunkten aufgenommen werden. Gerade in der vom NV-Zentrum entferntesten Messebene können Schwankungen in den Messwerten, durch eine feinere Abrasterung entweder als Messfehler, oder als eine Anomalie der sonst gleichmäßig verlaufenden Feldlinien enttarnt werden. Zudem kann durch einen größeren Stellweg und das Miteinbeziehen des Winkels das Magnetfeld in einem gewissen Raumvolumen rekonstruiert werden.



Abbildung 4.10.: Magnetische Flussdichte, gemessen in der xy-Ebene, oben: im Abstand von circa 50 mm, mittig: im Abstand von circa 37,5 mm, unten: im Abstand von circa 25 mm zum Wellenleiter.

4.2.5. Charakterisierung der ODMR-Spektroskopie

Zwei grundlegende Parameter, die bei jeder ODMR-Messung festgelegt werden müssen, sind die anregende Laserleistung vor dem Objektiv und die Mikrowellenleistung, die am Mikrowellensignalgenerator eingestellt wird. Es ist zu erwarten, dass es jeweils einen optimalen Wert oder Bereich gibt, sodass der Kontrast des ODMR-Spektrums maximal und die Linienbreite der einzelnen Peaks minimal werden. Der Kontrast eines Spektrums sollte bei immer gleicher Mikrowellenleistung von einer sehr geringen Laserleistung bis zu einem gewissen Wert ansteigen.

Wird die Laserleistung von einem sehr geringen Wert im Bereich weniger 10 μ W erhöht, so sollte sich die Fluoreszenzzählrate des NV-Zentrums langsame von dem Untergrund, den das Mikroskop auch ohne anregendes Licht detektiert, abheben. Somit sollte es auch zu einer Kontrastverbesserung kommen. Dieser Untergrund sollte eigentlich so gering wie möglich gehalten werden, doch kann er nicht vermieden werden. Die Zählrate, je nachdem, ob im Labor im Dunkeln gearbeitet wird, oder nicht und wie viele andere Lichtquellen gerade aktiv sind, lassen sich Zählraten von 0,1 bis 2 $\frac{\text{kCounts}}{s}$ messen. Dieses Verhalten ist bereits bei der Mikroskopie zusehen. Nachdem sich die Fluoreszenzzählrate deutlich von diesem Untergrund abhebt, gibt es, wie ebenfalls in der Mikroskopie, eine Anregungsleistung, bei dem der größte Kontrast von Fluoreszenz des NV-Zentrums zur Hintergrundfluoreszenz auftritt. Bei der Mikroskopie liegt der Wert der optimalen Anregungsleistung bei der Sättigungsleistung $P_{\rm S}$, siehe Kapitel 4.1. Für die ODMR-Spektren kann man ähnliches Verhalten erwarten, da hier sowohl der Kontrast zwischen NV-Fluoreszenz zur Hintergrundfluoreszenz, als auch der Fluoreszenzrückgang bei Resonanzfrequenz zum Kontrast des ODMR-Spektrums beiträgt. Ab diesem Wert sollte der Kontrast schließlich durch das schlechter werdende Verhältnis aus Fluoreszenz und Hintergrundfluoreszenz zurückgehen. Für die Linienbreite wird exakt dasselbe erwartet, auch hier wird es einen optimalen Wert geben, ab dem die Breite größer wird.

Der Kontrast und die Linienbreite bei Variation der Laserleistung und gleichbleibender Mikrowellenleistung ist in Abbildung 4.11 zusehen. Für diese Messung an NV 1 wird die Entartung des $m_{\rm S} \pm 1$ Zustands aufgehoben, sodass zwei klar getrennte Peaks erkennbar sind.

Es wird deutlich, dass die geschilderten Erwartungen erfüllt werden. Es ist ein leichter Anstieg des Kontrasts bis zu einer Laserleistung von ungefähr 200 µW erkennbar, die jedoch unterhalb der Sättigungsleitung liegt. Ab diesem Wert sinkt der Kontrast. Dass der Kontrast nicht die vollen 30 % erreicht, kann zum einen an der zu hohen, oder zu niedrigen Mikrowellenleistung von -15 dBm am Signalgenerator und zum anderen am nicht perfekt ausgerichteten Magnetfeld liegen. Die Halbwertsbreite wird mit steigender Laserleistung ebenfalls größer, wobei die Linienbreite des Übergangs mit der geringeren Resonanzfrequenz ab 1 mW eher konstant bleibt und die des höherfrequenten Übergangs zunehmend breiter wird.



Abbildung 4.11.: Oben: Kontrast der Peaks der ODMR-Spektren, unten: Linienbreite der Peaks bei den Positionen (2769, $0\pm1,0$) MHZ (blau) und (3006, $5\pm0,7$) MHZ (rot) in Abhängigkeit von der anregenden Laserleistung, gemessen direkt vor dem Objektiv.

Wird eine konstante Laserleistung gewählt und die Mikrowellenleistung erhöht, sollte bis zu einem gewissen Wert eine Verbesserung des Kontrasts auftreten. Aus einer geringen Mikrowellenleistung resultiert nur eine geringe Pumprate, die das NV-Zentrum in den dunklen Zustand bringt. Mit ihrem Anstieg sollte auch die Pumprate bis zu einem Maximum ansteigen. Ab dieser Rate ist keine Kontrastverbesserung möglich, da, wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben, die Wahrscheinlichkeit in den dunklen Zustand überzugehen auf theoretisch 30 % begrenzt ist. Durch die Erhöhung der Mikrowellenleistung ist also keine Kontrasterhöhung zu erwarten. Allerdings kann es bei großen Mikrowellenleistungen, je nach Dauer der Einstrahlung, zu einer Erwärmung der Probe und somit zu einem Drift des NV-Zentrums aus dem Fokus kommen. Dies hätte dann durchaus eine Verschlechterung des Kontrasts zur Folge. Die Linienbreite der Peaks sollte, wie bereits in 2.4.4 erwähnt, bei sehr geringer Mikrowellenleistung gering sein und zu größeren Leistungen breiter werden. Die unterste Grenze ist durch die Kohärenzzeit gegeben. Ab dem Rückgang des Kontrasts durch Drifts des NV-Zentrums wird schließlich auch die Halbwertsbreite weiter steigen.

Der Kontrast und die Linienbreite bei Veränderung der Mikrowellenleistung am Signalgenerator und gleichbleibender Laserleistung von ungefähr 250 μ W ist in Abbildung 4.12 zusehen. Die Messung verläuft analog zu derjenigen, bei der die Laserleistung variiert und die Mikrowellenleistung konstant gehalten wird.

Auch hier erfüllen die Messwerte die Erwartungen, außer, dass auch hier kein 30 %-iger Kontrast erreicht wurde. Wieder wird die Misausrichtung des Magnetfelds die Ursache sein. Der Kontrast nimmt bis zu einer Mikrowellenleistung von -12 dBm stetig zu und fällt dann wieder ab. Ab einer Leistung von -9 dBm wird das Spektrum so verzerrt, dass kein Peak mehr zu erkennen ist. Ursachen können der Drift des NV-Zentrums durch die Erwärmung, wie auch bei einer solchen Leistung zum Tragen kommende Reflexionen im Wellenleiter sein. Dass es sich nicht nur um einen Erwärmungsdrift handeln kann, wird bei Betrachtung der Halbwertsbreite für höhere Mikrowellenleistungen deutlich. Die relative Fluoreszenzzählrate sinkt bei größeren Leistungen im Bereich höhere Frequenzen, dadurch wird auch zuerst die Linienbreite der höherfrequenten Resonanz breiter. In Kapitel 3.2.2 sind mehrere Möglichkeiten zur Vermeidung solcher Reflexionen und einer Reduzierung der Erwärmung des System beschrieben.

Nun lässt sich noch eine untere Grenze der Kohärenzzeit T_2^* aus der Abhängigkeit der Halbwertsbreite von der Mikrowellenleistung bestimmen. Hierzu wird die Mikrowellenleistungsskala linearisiert, indem sie in die Einheit Milliwatt umgerechnet wird.



Abbildung 4.12.: Oben: Kontrast der Peaks der ODMR-Spektren, unten: Linienbreite der Peaks bei den Positionen (2769, $0 \pm 1, 0$) MHZ(blau) und (3006, $5 \pm 0, 7$) MHZ (rot) in Abhängigkeit von der Mikrowellenleistung am Signalgenerator.

Weiterhin wird die Verstärkung von circa 45 dB des Mikrowellenverstärkers mitberücksichtigt. Anschließend wird die Mikrowellenleistung durch einen Geradenfit linear auf eine verschwindende Mikrowellenleistung extrapoliert. Dies ergibt für die kleinere Resonanzfrequenz mit einem Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0.994$ die Linienbreite des Übergangs unter gegebenen Bedingungen von $\Delta \nu_1 = (8, 3 \pm 0, 4)$ MHz. Nach [ABL+09] lässt sich daraus die transversale Relaxationszeit mit $T_2^* = (\pi \Delta \nu)^{-1}$ bestimmen. Es resultiert eine Relaxationszeit von $T_2^* \ge (38, 5 \pm 1, 8)$ ns. Für die größere Resonanzfrequenz ergibt sich mit ebenfalls $R^2 = 0.994$ eine Linienbreite von $\Delta \nu_2 = (7, 0\pm 0, 4)$ MHz, was zu einer Kohärenzzeit von $T_2^* \ge (45, 5 \pm 2, 6)$ ns führt. In Kapitel 2.4.4 wurde bereits erwähnt, dass die Kohärenzzeit T_2^* für natürliche Diamanten im Bereich weniger Nanosekunden liegt. Die vorliegende Probe ist zwar nicht natürlichen Ursprungs, doch wurde sehr viel Stickstoff implantiert, sodass der hier bestimmte Wert der Relaxationszeit durchaus realistisch ist. Auch Messungen aus [ABL+09] lassen darauf schließen. Das bedeutet auch, dass das Auflösungsvermögen der ODMR-Messungen nicht allein technisch bedingt ist, sondern stark von der Reinheit der Diamantprobe abhängt. Zudem erklärt dieser Sachverhalt, warum es bei diesem Diamanten mit cw-ODMR-Messungen nicht möglich ist, eine weitere Aufspaltung des $m_{\rm S} = -1$ und $m_{\rm S} = +1$ in eine Duplett oder Triplett-Struktur zur Unterscheidung des am NV-Zentrum beteiligten Stickstoffs (¹⁴N oder ¹⁵N) zu beobachten. Um die Hyperfeinwechselwirkung mittels cw-ODMR zu ermöglichen, ist eine Auflösung der ODMR-Spektren von weniger als $\Delta \nu = 1$ MHz notwendig. Hierzu müssen die spektroskopierten NV-Zentren eine transversale Relaxationszeit von $T_2^* < (\pi \Delta \nu)^{-1} = 31,8$ µs aufweisen. Das keine Gleichheit für ODMR-Messungen gilt, liegt an der Linienverbreiterung durch eine nicht verschwindende Mikrowellenleistung.

4.3. Gepulste Messungen

Die cw-ODMR ermöglicht die spektroskopische Untersuchung der Zustände eines NV-Zentrums. Ihr sind jedoch durch die natürliche Linienbreite Grenzen gesetzt. Um ein NV-Zentrum und dessen Umgebung genauer zu charakterisieren, können gepulste Messungen durchgeführt werden. Sie ermöglichen die gezielte Manipulation und Auslese von Zuständen. Allgemein wird bei einer solchen Messung der Zustand des NV-Zentrums in $m_{\rm S} = 0$ des Triplett-Grundzustands initialisiert. Dann wird durch Mikrowelleneinstrahlung der Zustand manipuliert und anschließend ausgelesen. Die Initialisierung geschieht durch nicht resonante Anregung des Grundzustands ${}^{3}A_{2}$ mit der Wellenlänge $\lambda = 523$ nm in die phononischen Seitenbänder des angeregten Zustands ${}^{3}E_{2}$ und anschließender schneller Relaxation in ${}^{3}E_{2}$. Von dort gibt es zwei Zerfallsmöglichkeiten. Durch Aussendung eines Fluoreszenzphotons kann der Zustand mit einer Lebensdauer von etwa 12 ns [CTJ83] direkt, oder über die metastabilen Zustände mit einer Lebensdauer von circa 220 ns [AJBB10] in den Grundzustand mit $m_{\rm S} = 0$ übergehen. Nach einigen Anregungszyklen ist das NV-Zentrum mit hoher Wahrscheinlichkeit in $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = 0\rangle$ polarisiert. Anders, als bei der cw-ODMR ist bei gepulsten Messungen für die Zustandsauslese eine höhere Zeitauflösung der Fluoreszenzdetektion nötig. Da nach der Anregung des $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = \pm 1\rangle$ die Rückkehr aus $|{}^{3}E_{2}, m_{\rm S} = \pm 1\rangle$ in den Grundzustand $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = 0\rangle$ länger dauert, als die Rückkehr in den Grundzustand $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = 0\rangle$ nach der Anregung aus $|{}^{3}E_{2}, m_{\rm S} = 0\rangle$, lässt sich der Zustand, wie in Abbildung 4.13 zu sehen, unterscheiden.



Abbildung 4.13.: Durch die zeitabhängige Fluoreszenzintensität in arbiträren Einheiten (arbitrary units, a.u.) kann in der Auslese zwischen den Spinzuständen $m_{\rm S} = \pm 1$ (rot) und $m_{\rm S} = 0$ (blau) unterschieden werden.

Die Fluoreszenzintensität wird über die ersten 500 ns integriert und mit der Integration über die nachfolgenden 500 ns verglichen. Aus Kapitel 4.1 ist bekannt, dass die Zählrate bei Anregung mit der Sättigungsleistung eines einzelnen NV-Zentrums bei circa 40 $\frac{\text{kCounts}}{\text{s}}$ liegt. Daraus werden bei einmaliger Messung des Zustands innerhalb der ers-

ten 500 ns des Auslesepulses ungefähr 0,02 Photonen detektiert. Um eine zuverlässige Zustandsanalyse zu ermöglichen, wird deshalb dieselbe Messung zwischen 10^6 und 10^8 Mal wiederholt.

4.3.1. Rabioszillation

Die einfachste gepulste Messung ist die Messung der Rabioszillation zwischen dem $m_{\rm S} = 0$ und einem der $m_{\rm S} = \pm 1$ Spinzustände. In Abbildung 4.14 ist die nötige Puls-



Abbildung 4.14.: Der Laserpuls (grün) polarisiert in den Zustand $m_{\rm S} = 0$. der Mikrowellenpuls (blau) treibt die Rabioszillation und der zweite Laserpuls liest den Zustand aus.

sequenz schematisch dargestellt. Ein im Allgemeinen 1 µs Laserpuls dient der Initialisierung im Grundzustand $m_{\rm S} = 0$. Es folgt ein resonanter Mikrowellenpuls der Länge τ , der den Zustand um die Pulsfläche $A = \Omega \tau$ mit der Rabifrequenz Ω um die *u*-Achse der Bloch-Kugel dreht. Der anschließende Laserpuls der Länge 1 µs liest den Zustand, wie oben beschrieben aus. Wiederholt man diese Sequenz für unterschiedliche Mikrowellenpulslängen, so kann Rabioszillation gemessen werden. Die Abbildung 4.15 zeigt eine solche, an NV 2 durchgeführte Messung. Das Qubit dieser Messung besteht aus dem Zustand $m_{\rm S} = 0$ und $m_{\rm S} = +1$ mit einer Resonanzfrequenz von (3010, $0 \pm 6, 8$) MHz. Die Mikrowellenleistung am Signalgenerator beläuft sich auf -5 dBm. Da es sich wie in Kapitel 2.4.2 beschrieben um eine exponentiell gedämpfte Oszillation handelt, wurden die Messdaten mit der Funktion

$$f(t) = A\cos(2\pi\nu t + \phi) e^{-t/\tau_d} + b$$
(4.7)

gefittet. Es ergeben sich die Fitparameter $A = 0, 144 \pm 0, 008, \nu = (9, 278 \pm 0, 036)$ MHz, $\phi = (0, 567 \pm 0, 055)$ rad, $\tau_d = (399, 0 \pm 36, 9)$ ns und $b = (0, 885 \pm 0, 002)$. Somit folgt die Rabifrequenz von

$$\Omega = 2\pi \left(9,278 \pm 0,036\right) \text{ MHz.}$$
(4.8)

Innerhalb der Zerfallszeit τ_d , in der die Anfangsamplitude A auf $\frac{1}{e}$ -tel abfällt, werden bei der Rabifrequenz Ω drei komplette Oszillationen vollführt. Da es sich um keinen hochreinen Diamanten handelt, lässt sich der schnelle Abfall des Signals auf kurz anzunehmenden Relaxationszeiten zurückführen. Dazu können ebenfalls ein nicht perfekt ausgerichtetes Magnetfeld und Amplitudenschwankungen der Mikrowelle beitragen. Dennoch kann eine klare Rabioszillation über mehr als drei Periodendauern beobachtet werden. Mit der Kenntnis der Rabifrequenz lässt sich die Dauer eines π - beziehungsweise $\frac{\pi}{2}$ -Pulses bestimmen, die für weitere Messungen, wie die Ramsey-Messungen und das Spin-Echo vonnöten ist. Unter gegebenen Bedingungen dauert ein $\frac{\pi}{2}$ -Puls $\tau_{\pi/2} = (26, 9 \pm 0, 1)$ ns.



Abbildung 4.15.: Rabioszillation zwischen dem $m_{\rm S} = 0$ und dem $m_{\rm S} = +1$ Zustand mit der Rabifrequenz $\Omega = 2\pi (9,278 \pm 0,036)$ MHz. Aufgetragen ist die relative Fluoreszenz, also das Verhältnis der Fluoreszenzintensität integriert über die ersten 500 ns des Auslesepulses, zu der Fluoreszenzintensität integriert über die folgenden 500 ns gegen die Länge des Mikrowellenpulses.

4.3.2. Longitudinale Relaxationszeit

Durch die Kenntnis der Relaxationszeiten eines NV-Zentrums lassen sich dessen Qualität als Qubit für Quantenoperationen beurteilen und Rückschlüsse auf seine Umgebung ziehen. Die longitudinale Relaxationszeit T_1 stellt dabei die oberste Schranke dar und ist die maximale Zeit, in der eine Information im Spinzustand codiert gespeichert werden kann. Für ihre Messung muss lediglich einer der beiden Zustände des Qubits initialisiert werden. Anschließend wird das System für die Zeitspanne τ sich selbst überlassen, bevor der Zustand ausgelesen wird. Diese Sequenz ist in Abbildung 4.16 dargestellt. Eine Wiederholung der Sequenz für unterschiedliche Wartezeiten zwischen Initialisieren und Auslesen zeigt einen exponentiellen Zerfall. Die Zeit T_1 ergibt sich aus dem Fit der Funktion als die Zeit, die vergeht, bis der Zustand auf $\frac{1}{e}$ -tel der Anfangsamplitude abgefallen und in einen Gleichgewichtszustand übergegangen ist. Die Messwerte einer solchen Messung am NV 2 zeigt Abbildung 4.17.



Abbildung 4.16.: Der Laserpuls (grün) initialisiert den Zustand $m_{\rm S} = 0$. Für die Wartezeit τ wird das System sich selbst überlassen. Anschließend folgt der zweite Laserpuls zum Auslesen des Zustands.

Es ergibt sich eine longitudinale Relaxationszeit von

$$T_1 = (67, 8 \pm 8, 6) \ \mu s.$$
 (4.9)

In [JAJ⁺12] wurde für eine Diamantprobe mit einem Stickstoffanteil von 10 – 40 ppm bei Raumtemperatur eine Spin-Gitter-Relaxationszeit von $T_1 = 2,9$ ms gemessen. Dort ist auch zu sehen, dass die longitudinale Relaxationszeit bei einer höheren Implantationsdichte beziehungsweise höherem Stickstoffanteil geringer ausfällt, als bei solchen Diamanten mit einem geringeren Anteil, weshalb der gemessene Wert von ungefähr 68 µs bei der vorliegenden Probe durchaus realistisch ist. Durch die longitudinale Relaxationszeit ergibt sich somit als obere Schranke für die transversale Relaxationszeit $T_2 \leq 2T_1 \approx 136$ µs. Um die Probe genauer zu charakterisieren und die gemessene Relaxationszeit zu verifizieren, kann die Messung an mehreren NV-Zentren im Bereich einer ähnlichen Implantationsdichte wiederholt werden. Auch kann die Messung zum



Vergleich durch einen dem Initialisierungspuls angeschlossenen π -Mikrowellenpuls wiederholte werden. Dies würde den Zerfall des angeregten Zustands des Qubits messen.

Abbildung 4.17.: Es ist der normierte Rückgang des Fluoreszenzverhältnisses aus den zwei Zeitintervallen des Auslesepulses gegen die Wartezeit zwischen Initialisierungs- und Auslesepuls dargestellt.

4.3.3. Ramsey-Sequenz

Die transversale Relaxationszeit T_2^* kann mit der Ramsey-Pulssequenz, abgebildet in Abbildung 4.18 bestimmt werden. Ein Laserpuls initialisiert wieder den Spinzustand $m_{\rm S} = 0$. Ein Hadamard-Gatter in Form eines $\frac{\pi}{2}$ -Mikrowellenpulses bringt das Qubit in den Superpositionszustand $\frac{1}{\sqrt{2}}(|m_{\rm S}=0\rangle + |m_{\rm S}=1\rangle)$. Auf der Bloch-Kugel verharrt der Blochvektor in der uv-Ebene und sammelt abhängig von der Wartezeit τ und dem Einfluss des Spinbads sowie kristallinterner und externer Magnetfelder eine Phase auf. Ein anschließender $\frac{\pi}{2}$ -Puls rotiert den Spin um weitere 90°, sodass der zweite Laserpuls die Populationsdifferenz auslesen kann. Das Ergebnis einer solchen Messung an NV 2 mit -5 dBm Mikrowellenleistung am Signalgenerator ist in Abbildung 4.19 zusehen. Das gemessene Signal zeigt eine Modulation mit drei Frequenzen und wurde nach [CGDT⁺06] mit der Funktion

$$f(\tau) = \sum_{i=1}^{3} A_i \cos(2\pi \nu_i + \phi_i) e^{-(\tau/T_2^*)^3}$$
(4.10)

gefittet. Die drei Frequenzen ν_i entsprechen der Niveauverschiebung, die durch die Hyperfein- und Quadrupolaufspaltung des ¹⁴N verursacht werden. Aus den Fitparametern ergeben sich die Frequenzen $\nu_1 = (5, 56 \pm 0, 07)$ MHz, $\nu_2 = (3, 23 \pm 0, 06)$ MHz und $\nu_3 = (0, 96 \pm 0, 23)$ MHz. Dass die Frequenzen nicht exakt mit den in 2.2.3 angegebenen Aufspaltungen übereinstimmt, liegt daran, dass die Messung bei einem Magnetfeld von $B \approx 79$ Gauß unter einem Winkel von $\theta \approx 56^{\circ}$ durchgeführt wurde. Die zur NV-Achse orthogonal orientierte Magnetfeldkomponente führt zu Mischzuständen aus Elektronenspin- und Kernspinzuständen, wie es in [SBW+14] ausführlich geschildert wird.



Abbildung 4.18.: Der Initialisierungspuls (grün) des Lasers polarisiert in $m_{\rm s} = 0$. Der $\frac{\pi}{2}$ -Mikrowellenpuls (blau) flippt den Spin um 90° um die *u*-Achse. Während der Wartezeit päzediert der Bloch-Vektor um die *w*-Achse und sammelt abhängig von der Umgebung des NV-Zentrums eine Phase auf. Der zweite $\frac{\pi}{2}$ -Mikrowellenpuls dreht den Bloch-Vektor um weitere 90° um die *u*-Achse. Der zweite Laserpuls kann schließlich die Projektion in die Populationsdifferenz auslesen.

Es ergibt sich eine transversale Relaxationszeit von

$$T_2^* = (523 \pm 32) \text{ ns.}$$
 (4.11)

Die Ramsey-Fringes, also die Oszillation des gemessenen Signals kann prinzipiell auch durch andere Kernspins als den des ¹⁴N hervorgerufen werden. Da das Signal jedoch mit drei statt zwei Frequenzen moduliert ist, wie es durch die Anwesenheit eines ¹⁵N-Kerns der Fall wäre, ist davon auszugehen, dass es sich um die Wechselwirkung mit

einem ¹⁴N-Kernspin handelt. Eine Messung mit einem Magnetfeld parallel zur NV-Quantisierungsachse kann diese Vermutung verifizieren, da hier keine Mischung der Produktzustände S_+I_- und S_-I_+ mit dem Auf- und Absteigeoperatoren des Elektronenspins $S_{\pm}=S_x\pm {\rm i}S_{\rm y}$ und denen des Kernspins $I_{\pm}=I_x\pm {\rm i}I_{\rm y}$ auftreten. So können die in Kapitel 2.2.3 angegebenen Aufspaltungsfrequenzen wie in [Bec09] in Form von Modulationsfrequenzen gemessen werden. Die Erwartung, dass $T_2^* \ll 2T_1$ ist, wird in dieser Messung bestätigt. Allerdings ist die hier gemessene transversale Relaxationszeit deutlich größer, als die in Kapitel 4.2 an NV 1 bestimmte. Ein Grund kann die starke Frequenzmodulation sein. Wird diese Messung mit einem wohl ausgerichteten Magnetfeld parallel zur NV-Symmetrieachse durchgeführt, ist eine deutlich niedrigere Relaxationszeit zu erwarten. Dafür spricht ein exponentieller Fit des gemessenen Signals mit nur einer und zwar der geringsten Frequenz, wie er in [Bec09] durchgeführt wurde. Aus ihm ergibt sich $T_2^* = (45, 2 \pm 17, 1)$ ns. Dieser Wert stimmt im Rahmen des Fehler mit der aus den ODMR-Messungen ermittelten Relaxationszeit überein. Es ist zu beachten, dass es sich um zwei verschiedene NV-Zentren handelt, die prinzipiell unterschiedlichen Spinbädern ausgesetzt sind, sodass sich ihre Relaxationszeiten durchaus unterscheiden können. Die Größenordnung im Bereich von einigen 10 ns bis einigen



Abbildung 4.19.: Die Ramsey-Spektroskopie an NV 2 zeigt ein stark frequenzmoduliertes Signal. Die theoretische Erwartung wird durch den Fit (rot) bestätigt.

100 ns erscheint jedoch, aufgrund der hohen NV-Zentren-Dichte repräsentativ für diese Probe. Um dies zu verifizieren, müsste die Messung an weiteren NV-Zentren wiederholt werden.

4.3.4. Spin-Echo

Die Messung des Spin-Echos erlaubt es die Frequenzverschiebung zu eliminieren, in dem der Spin von seiner Umgebung entkoppelt wird. Genauer gesagt refokussiert der π -Mikrowellenpuls des Schemas aus Abbildung 4.20 den Spin und die in der Zeit $\tau/2$ aufgesammelte Phase wird in der folgenden Zeit wieder vernichtet. Dadurch werden nur Phasenfluktuationen gemessen. Die Abbildung 4.21 zeigt die Messung eines Spin-Echos am NV 2 bei einer Mikrowellenleistung von -5 dBm am Signalgenerator. Die Messung findet am selben Übergang statt, für den zuvor die beschriebene Rabifrequenz bestimmt wurde.



Abbildung 4.20.: Die Dynamik des Bloch-Vektors auf der Bloch-Kugel veranschaulicht zusammen mit dem Pulsschema die Spin-Echo-Sequenz.

Bei einem Magnetfeld von $B \approx 79$ Gauß sollte das Signal nach Vielfachen der Wartezeit $\tau = (\gamma_{^{13}C}B)^{-1} \approx 12 \mu s$ wiederkehren. Ursache dieser Wiederkehr ist das natürliche Vorkommen des 13 C in Diamant. Das nicht wiederkehrende Signal bedeutet, dass sich entweder kein 13 C in der Nähe des NV-Zentrums befindet, oder die Signalamplitude vorher unter $\frac{1}{e}$ -tel der Ausgangsamplitude gesunken ist. Auffällig sind eine schnell und eine langsam oszillierende Komponente auf der kleineren Zeitskala. Ist das Magnetfeld nicht parallel zur Quantisierungsachse des NV-Zentrums ausgerichtet, kommt es zu Modulation des Spin-Echo-Signals. Die orthogonale Magnetfeldkomponente B_{\perp} führt zu einer Mischung der Produktzustände $S_{+}I_{-}$ und $S_{-}I_{+}$. B_{\perp} führt damit zum Auftreten verbotener Übergänge, die wiederum für die Modulation durch eine Einhüllende des Spin-Echo-Signals verantwortlich ist. Die Ursache der Modulation und dessen Abhängigkeit von der magnetischen Flussdichte und dessen Winkel zur Quantisierungsachse des NV-Zentrums wird für den häufig vorkommenden ¹⁴N in [SBW⁺14, GDP⁺06] und [CGDT⁺06] genau untersucht. Das Signal zeigt die periodische Kopplung des Elektronenspins mit dem Kernspin, bis das Gesamtsignal durch den Einfluss des Spinbads kollabiert. Es handelt sich dabei um eine Dipol-Dipol-Kopplung, die dazu führt, dass der Elektronenspin vor dem π -Puls mit einer anderen Frequenz präzediert als nach dem Puls. Diese Phase hebt sich in der Sequenz nicht auf und ist somit als Oszillation sichtbar.

Nach [CGDT⁺06] kann das periodische Signal durch die Funktion

$$f(t) = (A - B \sin^2(\pi \nu_1 t + \phi) \sin^2(\pi \nu_2 t + \phi)) e^{-(t/\tau_d)^4}$$
(4.12)

gefittet werden. Es ergeben sich die Fitparameter $A = 0,932\pm0,011, B = 0,269\pm0,024, \nu_1 = (3,309\pm0,009)$ MHz, $\nu_2 = (0,320\pm0,009)$ MHz, $\tau_d = (10,166\pm0,528)$ µs und $\phi = (0,307\pm0,079)$ rad. Bei ν_1 handelt es sich um die Kopplungsfrequenz, ν_2 ist hingegen die Frequenz der Einhüllenden, die durch die verbotenen Übergänge entsteht. Zur Kontrolle wurde noch eine diskrete Fourier-Transformation des Spin-Echo-Signals (siehe Abbildung 4.21) durchgeführt, welches die zwei durch den Fit bestimmten Frequenzen bestätigt. Der Verlust des Signals nach $\tau_d \approx 10$ µs entspricht nicht T_2 . Das gemessene Signal zeigt einen Rückgang, gefolgt von einer gleichbleibenden Phase, doch die erwartete Rückkehr des Signals bleibt innerhalb der Messzeit aus. Das kann an dem nicht parallel ausgerichteten Magnetfeld liegen, oder aber daran, dass T_2 unter gegebenen Bedingungen kleiner als 11,9 µs ist. Das hat zur Folge, dass die Signalamplitude verschwunden ist, bevor es nach der Periodendauer der Spinpräzession des ¹³C zu einer Wiederkehr kommen konnte.

Neben dem nicht perfekt ausgerichteten Magnetfeld entsteht bei den gepulsten Messungen ein zusätzlicher Fehler durch die Ungenauigkeit des FPGA's, der nur auf 10 ns genaue Pulse zulässt. Somit lautet die korrekte Dauer des $\frac{\pi}{2}$ -Pulses $\tau_{\pi/2} = (27 \pm 10)$ ns. Zur Reduzierung des großen relativen Fehlers von 37 % auf weniger als 10 % kann die Mikrowellenleistung auf ungefähr -16 dBm verringert werden, sodass eine $\frac{\pi}{2}$ -Pulsdauer von $\tau_{\pi/2} = (100 \pm 10)$ ns entsteht. Dies hätte jedoch deutlich längere Messzeiten zur Folge. Hierbei ist eine häufigere Refokussierung nötig und die Automatisierung des Messvorgangs hilfreich. Dennoch ist $T_2 \leq 11,9$ µs ein durchaus realistischer Wert. Damit erfüllen die gemessenen Relaxationszeiten die Bedingung $T_2^* \leq T_2 \leq 2T_1$.



Abbildung 4.21.: Unten: Spin-Echo-Signal mit zwei Modulationsfrequenzen, links oben: Signal zwischen 0 und 6200 ns als Ausschnitt in Übereinstimmung mit nach der Theorie gefitteter Funktion (rot), rechts oben: Diskrete Fourier-Transformation zur Überprüfung der Frequenzen des Fits.

Die gepulsten Messungen sind eine optimale Ergänzung zur cw-ODMR-Methode. Durch sie kann am errichteten ODMR-Messplatz nicht nur die spektroskopische Untersuchung von NV-Zentren, sondern ebenfalls die Manipulation interner Spin-Freiheitsgrade durchgeführt werden. Durch kohärente Kontrolle des Elektronenspins kann Rabioszillation getrieben und eine $\frac{\pi}{2}$ -Pulsdauer von $\tau_{\pi/2} = 27$ ns erreicht werden. Durch die Kenntnis der Pulsdauer können Messungen nach der Ramsey-Methode und des Spin-Echos vollführt werden, mit deren Hilfe die Relaxationszeiten von $T_1 = 67, 8 \ \mu s, T_2 \leq 11, 9 \ \mu s$ und

 $T_2^* = 0,5$ µs eines Farbzentrums bestimmt wurden. In [ABL⁺09] wurden Dephasierungszeiten von NV-Zentren in Diamantproben mit unterschiedlichem Stickstoffvorkommen untersucht. Es wurden Dephasierungszeiten von $T_2^* \leq 291$ ns bei einer Stickstoffkonzentration von weniger als 1 ppm gemessen. Bis zu einer solchen Konzentration soll der Stickstoff maßgeblich für den Relaxationsprozess sein. Bei geringerer Konzentration sollen andere NV-Zentren und ¹³C-Kernspins die Dephasierung dominieren. Das bedeutet, dass die transversale Relaxation des in dieser Arbeit verwendeten Diamanten hauptsächlich durch Stickstoff hervorgerufen wird, da keine Messung auf das Vorhandensein von ¹³C hindeutet, wobei die gemessene Dephasierungszeit über der in [ABL⁺09] ermittelten liegt.

Die geringen Relaxationszeiten qualifizieren das vermessene NV-Zentrum nicht zur effektiven Nutzung als Qubit. Wäre wenige zehn Nanometer entfernt ein zweites NV-Zentrum, müsste die Kohärenzzeit beider in der Größenordnung von Millisekunden liegen, um Verschränkungsoperationen umsetzten zu können [BJPR11]. Das Signal der Kopplung des Kernspins mit dem des Elektrons ist nach zwei Periodendauern verschwunden damit auch zu kurz für die Umsetzung von Quantenalgorithmen. Der untersuchte Diamant soll jedoch nur der Charakterisierung des Aufbaus und nicht zur Verwendung als Quantenprozessor dienen. Es wird deutlich, dass der ODMR-Messplatz in der Lage ist NV-Zentren in Diamant und ihre Wechselwirkung mit benachbarten Kernspins zu untersuchen. Nun muss auf die Integration in den Implantationsaufbau durch einpassen der Komponenten in die Ultrahochvakuum-Apparatur hingearbeitet werden. Durch die Verwendung der hochreinen Diamantprobe von *Element Six*¹, die nahezu frei von ¹³C ist und die deterministische Implantation einzelner NV-Zentren werden schließlich auch die benötigten Relaxationszeiten im Millisekundenbereich erreicht.

¹ http://www.e6.com/

4. Experimente und Ergebnisse

5 Ausblick

Der Hauptteil dieser Arbeit besteht aus der Errichtung des ODMR-Messplatzes. Dazu gehören die technischen Komponenten, welche der Experimentsteuerung, der Mikrowellenerzeugung und dessen Heranführung an den Diamanten und der Zustandsdetektion des NV-Zentrums dienen. Hinzu kommen die softwareseitige Implementierung der Schnittstellen zur sequenziellen Steuerung der Einzelkomponenten sowie die der Messroutinen und der Verarbeitung von Messergebnissen. Das bestehende optische Setup, erweitert um einen zweiten Mikroskoparm durch Installation eines Ölimmersionsobjektivs und eines stabilen Mikroskoptischs, vervollständigt den ODMR-Messplatz.

Das konfokale Fluoreszenzmikroskop des ODMR-Messplatzes ist mit einer Detektionseffizienz von etwa 11 % in der Lage NV-Zentren im Diamanten mit ungefähr 264 nm aufzulösen. Der Mikroskoptisch und das dazugehörige Nanopositioniersystem werden nach einer Temperaturstabilisierung stabil und präzise genug sein, um durch die Erweiterung zum GSD- oder STED-Mikroskop Auflösungen im einstelligen Nanometerbereich zu realisieren. Dies ist für die optische Analyse implantierter Arrays aus NV-Zentren wichtig.

Die Messung der Grundzustands- und der Zeeman-Aufspaltung mittels ODMR funktioniert zuverlässig. Es ist zusehen, dass die erreichte Auflösung der Spektren von ungefähr 11 MHz nahe an der durch die transversale Relaxationszeit begrenzte Auflösung herankommt. Eine deutliche Verbesserung wird die Verwendung des nahezu ¹³C-freien Diamanten von Element Six im zukünftigen Setup bringen. Auch die Verifizierung des linearen Zusammenhangs zwischen Zeeman-Aufspaltung der Spinzustände $|{}^{3}A_{2}, m_{\rm S} = \pm 1\rangle$ und der zur NV-Quantisierungsachse parallelen Komponente der magnetischen Flussdichte zeigt die Zuverlässigkeit der Ermittlung der magnetischen Flussdichte und dessen Winkel. Für effizientere Messungen wird eine automatisierte Positionierung des Permanentmagneten, oder die Verwendung des Elektromagneten sorgen. Das ermöglicht gleichzeitig die exaktere Einstellung der für die gepulsten Messungen relevanten Parameter.

Zusätzlich zur cw-ODMR-Spektroskopie ermöglicht das Setup die gepulste kohärente Kontrolle des Elektronenspins und die anschließende Zustandsdetektion. Es können Rabioszillation getrieben sowie Mikrowellenpulse für Ramsey- und Spin-Echo-Sequenzen erzeugt werden. Dadurch können die einzelnen Relaxationszeiten zur Charakterisierung des NV-Zentrums und seiner Umgebung gemessen werden. In der vorhandenen Diamantprobe wurden eine longitudinale Relaxationszeit von $T_1 \approx 68$ µs und transversale Relaxationszeiten von $T_2^* \approx 0,5$ µs und $T_2 \leq 12$ µs gemessen. Es konnte auch die periodische Kopplung des Elektronenspins mit einem benachbarten Kernspin durch das Spin-Echo detektiert werden. Für die gepulsten Messungen empfiehlt es sich in Zukunft eines FPGA's zu bedienen, der zum einen nanosekundengenaue TTL-Pulse erzeugen und zum anderen das zeitabhängige Zählen des TimeHarps übernehmen kann. Dadurch können längere Sequenzen, als 30 µs dauernde, erzeugt und gemessen werden. Auch die Experimentsteuerung kann damit komplett durch die eigene Messsoftware geschehen.

Der OMDR-Messplatz bildete somit eine solide Grundlage zur Weiterentwicklung und späteren Vereinigung des Messplatzes mit dem Implantationsaufbau, sodass die zukünftige Herstellung eines beliebigen und skalierbaren Quantenregisters auf Basis von Festkörperqubits ein Schritt näher gerückt ist.



A.1. ECL-Box

Im Setup aus 3.2 für gepulste Messungen wird ein Einzel-Photonen-Zähl-System, das PicoHarp 300 verwendet. An den zwei frontseitigen Eingänge dürfen nur Spannungen zwischen -2000 mV und +2000 mV anliegen, da dies ihre Zerstörschwelle ist. Die optimale Arbeitsspannungsbereich liegt zwischen -200 und -400 mV. Der Puls der APD bei Detektion eines Photons hat hingegen eine Amplitude von 5 V. Der FPGA, der für die Synchronisation des PicoHarps verantwortlich ist, erzeugt Pulse von 3, 3 V. Beide Signale müssen also in den optimalen Spannungsbereich transformiert und invertiert werden, bevor sie zum PicoHarp gelangen dürfen. Des Weiteren reagiert der PicoHarp auf fallende Flanken, die eine Abfallzeit von kleiner gleich 2 ns besitzen.

Bei der einfachen Transformation und Invertierung werden diese Zeiten nicht erreicht, sodass sehr schnelle Bauteile und in Abbildung A.1 gezeigte Schaltung verwendet werden müssen. Hier ist unbedingt darauf zu achten, dass für die APD und den FPGA die jeweils vorgesehene Ein- und Ausgänge benutzt werden, da andernfalls einzelne Komponenten der Schaltung oder sogar der PicoHarp Schaden nehmen können. Die in Abbildung A.1 dargestellte Schaltung besitzt am Eingang für das APD-Signal einen 50 Ω -Abschluss, sodass hier nicht mehr die vollen 5 V anliegen. Dies ist der einzige Unterschied zur Schaltung für das FPGA-Signal.

Das ECL-Bauteil KLT24 stellt ein Emitter-gekoppeltes Logikgatter aus der Digitaltechnik dar. Dieses aktive Bauelement ist mit Durchlaufzeiten von 0,5 bis maximal 2,0 ns deutlich schneller als eine analoge durch Transistor-Transistor-Logik realisierte Schaltung. Es erzeugt abfallende beziehungsweise ansteigende Flanken von 0,25 bis maximal 1,25 ns. Wird am Eingang D des ECL-Bauteils eine TTL-Puls-Quelle angeschlossen, sorgt der ECL für eine Invertierung des Signals, verringert die Anstiegs- beziehungsweise Abfallzeit des Pulses und transformiert das Signal zusammen mit den nachfolgenden Schottky Dioden so, dass es im optimalen Arbeitsbereich der Eingangskanäle des PicoHarps liegt. Bei den Silicon Planar Schottky Dioden handelt es sich um Ultra High Speed Switching Dioden vom Typ BAT54 mit Schaltzeiten von weniger als 100 ns.



Abbildung A.1.: ECL-Schaltkreis zur Transformierung des APD- und FPGA-Synchronisierung-Signals

Bei Schaltungen im Gigaherz-Bereich muss darauf geachtet werden, dass die Signallaufwege deutlich unter $\frac{\lambda}{4}$ liegen, sodass Reflexionen innerhalb der Schaltung verhindert werden. Bei Pulslängen im Nanosekunden-Bereich bedeutet dies Laufwege von wenigen Zentimetern nicht zu überschreiben. Aus diesem Grund wurden die SMA-Koaxialanschlüsse der Eingänge direkt an den Eingang D des ECL-Bauteils gelötet. Auch der Weg vom invertierten Ausgang \overline{Q} des ECL-Bauelements wurde durch die geringe Größe der drei Schottky Dioden und den direkt folgenden SMA-Koaxialanschluss so kurz wie möglich gehalten.

A.2. Im Setup verwendete Teile

Teil	Hersteller	Model
Laser	Lumina Visual Productions	LP532-200
SMF	Schäfer Kirchhoff	MC-460-3.3-NA011-3-APC-150-P
dichroischer Spiegel	AHF Analysetechnik	zt 532 RDC
Objektiv	Leica	HCX PL APO 100x/1.40-0.70 Öl
Immersionsöl	Leica	Typ F Immersion liquid, ISO 8036
Filter	RazorEdge Sperrfilter LP 633 RU	AHF Analysetechnik
APD	Laser Components	COUNT-50C
MW Generator	Anritsu	MG 3692 B
SMA-Kabel	Rupptronic	H+S Astrolab minibend R
Switch	Mini-Curcuits	ZASWA-2-50DR+
MW Verstärker	Mini-Curcuits	ZHL-16W- 43+
EOM Treiber	Qioptiq Photonics GmbH & Co.	KG LIV 20
EOM	Qioptiq Photonics GmbH & Co. KG	LM 0202 5W VIS
Piezokontroller	Physik Instrumente (PI) GmbH & Co. KG	E-725.3CD
Nanopositioniersystem	Physik Instrumente (PI) GmbH & Co. KG	P-563.3CD
Mikro-Verschiebetisch	Physik Instrumente (PI) GmbH & Co. KG	M-545.2MO
Zähler	National Instruments	NI PCI 6723
Zähler Anschlussbox	National Instruments	SCB-68A
Zähler (Arduino)	made by Dr. K. Singer ^{<i>a</i>} & K. N. Talazzi ^{<i>a</i>}	
TimeHarp	PicoQuant GmbH	PicoHarp 300
ECL-Box	selfmade, siehe Anhang A.1	
	doe optication and tool include Coting	

Tabelle A.I.: Teileliste des optischen und technischen Setups

 ^a Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Institut für Physik, AG QUANTUM, Staudingerweg 7, D-55128 Mainz, 2014

A. Anhang

B Anhang

B.1. Ergänzungen zur Simulation des Elektromagneten

In der Simulation des Elektromagneten mit der Software Comsol Multiphysics werden einige materialspezifischen Daten für reines Kupfer, Weicheisen und Luft verwendet, die der Tabelle B.1 entnommen werden können.

Die beiden tonkopfartigen Weicheisenkerne des Magneten werden durch Bézier-Polygone (siehe Tabelle B.2) erzeugt. Die Verbindung der Punkte (x_1, y_1) und (x_2, y_2) zu linearen Segmenten schließen eine Fläche ein, die an der y-Achse gespiegelt und 1 cm extrudiert einen der Spulenkerne ergibt. Die beiden Kerne sind ineinander gesteckt und orthogonal angeordnet, sodass die Öffnungen die gleiche Orientierung besitzen und die Spitzen auf gleicher Höhe liegen. Die Position wird durch einen Halter fixiert.

Die Abbildung B.1 zeigt den auf Basis der Simulation gefertigten Elektromagneten.



Abbildung B.1.: Gefertigter Elektromagnet aus vier Spulen, je zwei an einem tonkopfähnlichen Weicheisenkern. Eine spezielle Halterung sorgt für die richtige Position der Kerne und kann über dem Wellenleiter an einem XYZ-Verschiebetisch befestigt werden.

Eigenschaft	Name		Wert		Einheit
		Kupfer	\mathbf{Eisen}	Luft	
relative Permeabilität	$\mu_{ m r}$	1	4000	1	1
relative Dielektrizitätskonstante	$\epsilon_{ m r}$	1	1	1	1
elektrische Leitfähigkeit	$\sigma_{ m e}$	$5,998\cdot 10^7$	$1,12\cdot 10^7$	0	$\rm S/m$
thermischer Ausdehnungskoeffizient	α	$1,7\cdot 10^{-5}$	$12,2\cdot 10^{-6}$		1/K
Wärmekapazität bei konstantem Druck	$C_{\rm p}$	385	440		J/(kgK)
Dichte	σ	8700	7870	$\rho(T)$	$\rm kg/m^3$
Wärmeleitfähigkeit	K	400	76,2	$\lambda(T)$	W/(m K)
Elastizitätsmodul	E	$110\cdot 10^9$	$200\cdot 10^9$		\mathbf{Pa}
Poisson'sches Verhältnis	ν	0.35	0.29		1
spezifischer Referenzwiderstand	$ ho_{ m R}$	$1,72\cdot 10^{-8}$			$\Omega{ m m}$
Widerstands-Temperaturkoeffizient	α_{T}	0,0039			1/K
Referenztemperatur (Umgebung)	T_0	298	298	298	K
Verhältnis von spezifischen Wärmen	k			1,4	1
dynamische Viskosität	μ			$\eta(T)$	Pas
Tabelle B.1.: Materialspezifischen Kennwe	erte, die in	der Simulation	n des Elektrom	agneten	verwendet

.1.: Materialspezifischen Kennwerte, die in der Simulation des Elektromagne wurden. Alle nicht angegebenen Größen sind für die Simulation nicht vo temperaturabhängige Größen von Luft wurden durch eine Funktion geke die bereits in Comsol integriert ist.

lineare Segmente des				lineare Segmente des			
Bézier-Polygons des kleinen Kerns				Bézier-Polygons des großen Kerns			
$x_1 [m]$	$y_1 [m]$	$x_2 [m]$	$y_2 [m]$	$x_1 [m]$	$y_1 [m]$	x_2 [m]	$y_2 [m]$
0.0000	-0.0100	0.0300	-0.0100	0.0000	-0.0160	0.0300	-0.0160
0.0300	-0.0100	0.0300	0.0300	0.0300	-0.0160	0.0300	0.0300
0.0300	0.0300	0.0010	0.0325	0.0300	0.0300	0.0010	0.0325
0.0010	0.0325	0.0010	0.0275	0.0010	0.0325	0.0010	0.0275
0.0010	0.0275	0.0200	0.0250	0.0010	0.0275	0.0200	0.0250
0.0200	0.0250	0.0200	-0.0050	0.0200	0.0250	0.0200	-0.0110
0.0200	-0.0050	0.0000	-0.0050	0.0200	-0.0110	0.0000	-0.0110
0.0000	-0.0050	0.0000	0.0000	0.0000	-0.0110	0.0000	-0.0060
0.0000	0.0000	0.0000	-0.0100	0.0000	-0.0060	0.0000	-0.0160

Tabelle B.2.: Bézier-Polygone der Weicheisenkerne des Elektromagneten. Sie sind jeweils
an der y-Achse bei x=0 zu spiegeln und 10 mm zu extrudieren, damit die
vollständige Kerngeometrie entsteht.
C Anhang

C.1. Altes Positioniersystem

Das erste Nanopositioniersystem, welches zuerst am ODMR-Messplatz zum Einsatz kam, ist von der Firma Smaract und eine veraltete Version des Modells SLC 1730 S-UHV inklusive Kontroller. Da es für das Ultrahochvakuum vorgesehen ist, muss es staubsicher verbaut werden. Dies geschieht vorerst mit einer reißfesten aber flexiblen, leichten Tüte. Auch kann der Tisch bei vertikaler Verwendung nur ein sehr geringes Gewicht tragen. Deshalb muss bei der Halterung des Wellenleiters eine Leichtbauweise zur Reduzierung der Masse verwendet werden, ohne dadurch die Stabilität zu vernachlässigen. Der Aufbau ist sonst, bis auf eine andere Tischplatte identisch mit dem aus Kapitel 3.2.1. Durch den großen Verfahrweg des Tischs in alle drei Raumrichtungen von 21 mm je Achse, ist es nicht nötig das Objektiv höhenverstellbar zu installieren. Der Aufbau ist in Abbildung C.1 zu sehen. Die normale Fluoreszenzmikroskopie funktioniert mit diesem Positioniersystem, auch wenn bereits ohne befestigte Koaxialkabel Drifts auftreten. Auch erweist sich das System durch die fehlende Abfragemöglichkeit der aktuellen Position als absolut ungeeignet für die Mikroskopie. Das größte Problem, welches der Verschiebetisch mit sich bringt, ist die Instabilität bei leichten Scher- oder Zugkräften. Werden die Koaxialkabel für die Mikrowelle an den Wellenleiter angeschlossen, ist es

C. Anhang

noch möglich ein NV-Zentrum zu fokussieren. Die Drifts werden jedoch so groß, dass es keine 30 s im Fokus blieb und somit ein die Aufnahme eines ODMR-Spektrums unmöglich ist. Auch der Versuch einen Autofokus in der Software zu realisieren, bringt keine Abhilfe. Der Autofokus soll nach jedem Frequenzdurchlauf in der ODMR-Messung ein kleines 2D-Bild des NV-Zentrums aufnehmen, einen zweidimensionalen Gauß-Fit durchführen, an die Position der Amplitude der Gauß-Funktion fahren, dort ein Tiefenscan durchführen und schließlich an die Position des Maximums des eindimensionalen Gauß-Fits fahren. Der Autofokus funktioniert einwandfrei, doch ist selbst der Drift während eines Frequenzdurchgangs zu groß, als dass eine Messung möglich ist. Auch schlechtere, dennoch leichtere Koaxialkabel und deren Aufhängung für weniger Krafteinwirkung helfen nicht.



Abbildung C.1.: altes Positioniersystem mit einer Gabel, die den Wellenleiter über dem Objektiv hält. Der Verschiebetisch ist in einer Tüte verpackt.

Literaturverzeichnis

- [Abb73] E. Abbe. Beiträge zur theorie des mikroskops und der mikroskopischen wahrnehmung. Archiv für mikroskopische Anatomie, 9(1):413–418, 1873.
- [ABF⁺90] T. R. Anthony, W. F. Banholzer, J. F. Fleischer, Lanhua Wei, P. K. Kuo, R. L. Thomas, and R. W. Pryor. Thermal diffusivity of isotopically enriched ¹²C diamond. *Phys. Rev. B*, 42:1104–1111, Jul 1990.
- [ABL⁺09] V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, C. Santori, K.-M. C. Fu, P. E. Barclay, R. G. Beausoleil, H. Linget, J. F. Roch, F. Treussart, S. Chemerisov, W. Gawlik, and D. Budker. Diamonds with a high density of nitrogenvacancy centers for magnetometry applications. *Phys. Rev. B*, 80:115202, Sep 2009.
- [ABLSS01] Djordjevic AR., R.M. Biljie, V.D. Likar-Smiljanic, and T.K. Sarkar. Wideband frequency-domain characterization of fr-4 and time-domain causality. *Electromagnetic Compatibility, IEEE Transactions on*, 43(4):662–667, Nov 2001.
- [AJBB10] V. M. Acosta, A. Jarmola, E. Bauch, and D. Budker. Optical properties of the nitrogen-vacancy singlet levels in diamond. *Phys. Rev. B*, 82:201202, Nov 2010.
 - [BB84] C. H. Bennett and G. Brassard. Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing. Proceedings of the IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing, Bangalore, India, IEEE, New York, 1984.
- [BBC⁺09] R S Balmer, J R Brandon, S L Clewes, H K Dhillon, J M Dodson, I Friel, P N Inglis, T D Madgwick, M L Markham, T P Mollart, N Perkins, G A Scarsbrook, D J Twitchen, A J Whitehead, J J Wilman, and S M Woollard. Chemical vapour deposition synthetic diamond: materials, technology and applications. Journal of Physics: Condensed Matter, 21(36):364221, 2009.

- [BCK⁺08] Gopalakrishnan Balasubramanian, I. Y. Chan, Roman Kolesov, Mohannad Al-Hmoud, Julia Tisler, Chang Shin, Changdong Kim, Aleksander Wojcik, Philip R Hemmer, Anke Krueger, Tobias Hanke, Alfred Leitenstorfer, Rudolf Bratschitsch, Fedor Jelezko, and Jorg Wrachtrup. Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions. *Nature*, 455, 2008.
 - [Bec09] J. Beck. Quantenregister in diamant: Experimentelle realisierung von mehrspinverschränkung. Diplomarbeit, Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, Jan 2009.
 - [Beh12] Katja Beha. Einzelne farbzentren in diamant: Grundlegende physikalische eigenschaften, nanophotonik und quantenoptik. Dissertation, Universität Konstanz, Sep 2012.
- [BJPR11] A. Bermudez, F. Jelezko, M. B. Plenio, and A. Retzker. Electron-mediated nuclear-spin interactions between distant nitrogen-vacancy centers. *Phys. Rev. Lett.*, 107:150503, Oct 2011.
- [BNT⁺09] Gopalakrishnan Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, V. Jacques, P. R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. *Nature Materials*, 8:383–387, 2009.
- [BZG⁺08] A. Batalov, C. Zierl, T. Gaebel, P. Neumann, I.-Y. Chan, G. Balasubramanian, P. R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Temporal coherence of photons emitted by single nitrogen-vacancy defect centers in diamond using optical rabi-oscillations. *Phys. Rev. Lett.*, 100:077401, Feb 2008.
- [CGDT⁺06] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Coherent dynamics of coupled electron and nuclear spin qubits in diamond. *Science*, 314(5797):281– 285, 2006.
 - [CJHL09] P. Cappellaro, L. Jiang, J. S. Hodges, and M. D. Lukin. Coherence and control of quantum registers based on electronic spin in a nuclear spin bath. *Phys. Rev. Lett.*, 102:210502, May 2009.

- [CTJ83] A T Collins, M F Thomaz, and M I B Jorge. Luminescence decay time of the 1.945 ev centre in type ib diamond. Journal of Physics C: Solid State Physics, 16(11):2177, 1983.
- [CW08] John Clarke and Frank K. Wilhelm. Superconducting quantum bits. Nature, 453:1031–1042, June 2008.
- [CZ95] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum computations with cold trapped ions. *Phys. Rev. Lett.*, 74:4091–4094, May 1995.
- [DDF⁺11] M. W. Doherty, F. Dolde, H. Fedder, F. Jelezko, J. Wrachtrup, N. B. Manson, and L. C. L. Hollenberg. Theory of the ground state spin of the nvcenter in diamond: I. fine structure, hyperfine structure, and interactions with electric, magnetic and strain fields. ArXiv e-prints, Jul 2011.
 - [Deu89] D. Deutsch. Quantum computational networks. Proc. R. Soc. London, Ser A(425):73–90, 1989.
 - [DH76] G. Davies and M. F. Hamer. Optical studies of the 1.945 ev vibronic band in diamond. Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences, 348(1653):285–298, 1976.
 - [DiV00] David P. DiVincenzo. The physical implementation of quantum computation. arXiv preprint quant-ph/0002077, 2000.
 - [Dol10] Florian Dolde. Functional micro structures to control single spins. Diplomarbeit, Institut für Quantenoptik, Universität Ulm, 2010.
- [EMKA05] R. J. Epstein, F. M. Mendoza, Y. K. Kato, and D. D. Awschalom. Anisotropic interactions of a single spin and dark-spin spectroscopy in diamond. *Nature Physics*, 1:94–98, Nov 2005.
 - [Fey82] R. P. Feynman. Simulating physics with computers. Int. Journal of Theoretical Physics, 21(6/7):467–488, 1982.
 - [Fra13] F. S. Frank. Development of magnetic field control for magnetic resonance on single spins. Bachelorthesis, Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, Dez 2013.
- [GDP⁺06] Torsten Gaebel, Michael Domhan, Iulian Popa, Christoffer Wittmann, Philipp Neumann, Fedor Jelezko, James R. Rabeau, Nikolas Stavrias, Andrew D. Greentree, Steven Prawer, Jan Meijer, Jason Twamley, Philip R.

Hemmer, and Jorg Wrachtrup. Room-temperature coherent coupling of single spins in diamond. *Nature*, 2:408–413, jun 2006.

- [GDT⁺97] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers. *Science*, 276(5321):2012–2014, 1997.
 - [Gro97] L. K. Grover. Quantum mechanics helps in searching for a needle in a haystack. *Phys. Rev. Lett.*, 79:325, 1997.
- [HCPY84] J. F. Herbst, J. J. Croat, F. E. Pinkerton, and W. B. Yelon. Relationships between crystal structure and magnetic properties in nd₂fe₁₄b. *Phys. Rev.* B, 29:4176–4178, Apr 1984.
 - [How60] T.H. Howard. Diamond synthesis, Aug 1960. US Patent 2,947,608.
 - [HS10] I.V. Hertel and C.P. Schulz. Atome, Moleküle und optische Physik 2: Moleküle und Photonen - Spektroskopie und Streuphysik. Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg, 2010.
 - [HSM04] J Harrison, M.J Sellars, and N.B Manson. Optical spin polarisation of the n-v centre in diamond. *Journal of Luminescence*, 107(1–4):245 – 248, 2004. Proceedings of the 8th International Meeting on Hole Burning, Single Molecule, and Related Spectroscopies: Science and Applications.
 - [Jah12] Kay Jahnke. Kohärente kontrolle von einzelspins in diamant. Diplomarbeit, Institut für Quantenoptik, Universität Ulm, 2012.
- [JAJ⁺12] A. Jarmola, V. M. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov, and D. Budker. Temperature- and Magnetic-Field-Dependent Longitudinal Spin Relaxation in Nitrogen-Vacancy Ensembles in Diamond. *Physical Review Letters*, 108(19):197601, May 2012.
- [JGP⁺04a] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan, A. Gruber, and J. Wrachtrup. Observation of coherent oscillation of a single nuclear spin and realization of a two-qubit conditional quantum gate. *Phys. Rev. Lett.*, 93:130501, Sep 2004.
- [JGP⁺04b] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, and J. Wrachtrup. Observation of coherent oscillations in a single electron spin. *Phys. Rev. Lett.*, 92:076401, Feb 2004.

- [JGR⁺14] M. Jamali, I. Gerhardt, M. Rezai, K. Frenner, H. Fedder, and J. Wrachtrup. Fabrication of Solid-Immersion-Lenses by focussed ion beam milling. *ArXiv e-prints*, June 2014.
- [JGW⁺14] G. Jacob, K. Groot-Berning, S. Wolf, S. Ulm, L. Couturier, U. G. Poschinger, F. Schmidt-Kaler, and K. Singer. Single particle microscopy with nanometer resolution. ArXiv e-prints, May 2014.
 - [JW06] F. Jelezko and J. Wrachtrup. Single defect centres in diamond: A review. *physica status solidi (a)*, 203(13):3207–3225, 2006.
 - [Kan98] B. E. Kane. A silicon-based nuclear spin quantum computer. Nature, 393:133–137, May 1998.
- [KCB⁺03] T. A. Kennedy, J. S. Colton, J. E. Butler, R. C. Linares, and P. J. Doering. Long coherence times at 300 k for nitrogen-vacancy center spins in diamond grown by chemical vapor deposition. *Applied Physics Letters*, 83(20):4190– 4192, 2003.
- [KMZW00] Christian Kurtsiefer, Sonja Mayer, Patrick Zarda, and Harald Weinfurter. Stable solid-state source of single photons. *Phys. Rev. Lett.*, 85:290–293, Jul 2000.
 - [LD98] D. Loss and D. P. DiVincenzo. Quantum computation with quantum dots. Phys. Rev. Lett., 57:120–126, January 1998.
 - [MA76] N.David Mermin and Neil W. Ashcroft. *Solid State Physics*. Cengage Learning Emea, 1976.
- [MBD+05] J. Meijer, B. Burchard, M. Domhan, C. Wittmann, T. Gaebel, I. Popa, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Generation of single color centers by focused nitrogen implantation. *Applied Physics Letters*, 87(26):-, 2005.
 - [Mes08] D. Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Teubner Studienbücher. Vieweg+Teubner Verlag, 2008.
 - [Moo65] G. E. Moore. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics*, 38(8):114–117, 1965.
- [MPV⁺08] J. Meijer, S. Pezzagna, T. Vogel, B. Burchard, H.H. Bukow, I.W. Rangelow, Y. Sarov, H. Wiggers, I. Plümel, F. Jelezko, J. Wrachtrup, F. Schmidt-Kaler, W. Schnitzler, and K. Singer. Towards the implanting of ions and

positioning of nanoparticles with nm spatial resolution. Applied Physics A, 91(4):567-571, 2008.

- [MVB⁺06] J. Meijer, T. Vogel, B. Burchard, I.W. Rangelow, L. Bischoff, J. Wrachtrup, M. Domhan, F. Jelezko, W. Schnitzler, S.A. Schulz, K. Singer, and F. Schmidt-Kaler. Concept of deterministic single ion doping with sub-nm spatial resolution. *Applied Physics A*, 83(2):321–327, 2006.
- [NBS⁺10] Philipp Neumann, Johannes Beck, Matthias Steiner, Florian Rempp, Helmut Fedder, Philip R. Hemmer, Jörg Wrachtrup, and Fedor Jelezko. Single-shot readout of a single nuclear spin. Science, 329(5991):542–544, 2010.
 - [Neu11] Philipp Neumann. Towards a room temperature solid state quantum processor - the nitrogen-vacancy center in diamond. Dissertation, Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, 2011.
- [NKJ⁺05] A.P. Nizovtsev, S.Ya. Kilin, F. Jelezko, T. Gaebal, I. Popa, A. Gruber, and J. Wrachtrup. A quantum computer based on nv centers in diamond: Optically detected nutations of single electron and nuclear spins. Optics and Spectroscopy, 99(2):233–244, 2005.
- [NKN⁺10] P. Neumann, R. Kolesov, B. Naydenov, J. Beck, F. Rempp, M. Steiner, V. Jacques, G. Balasubramanian, M. L. Markham, D. J. Twitchen, S. Pezzagna, J. Meijer, J. Twamley, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Quantum register based on coupled electron spins in a room-temperature solid. *Nat Phys*, 6:249–253, Apr 2010.
- [NRB⁺10] Boris Naydenov, V. Richter, Johannes Beck, Matthias Steiner, Philipp Neumann, Gopalakrishnan Balasubramanian, Jocelyn Achard, Fedor Jelezko, Jörg Wrachtrup, and Rafi Kalish. Enhanced generation of single optically active spins in diamond by ion implantation. Applied Physics Letters, 96(16):-, 2010.
- [NRL⁺10] Boris Naydenov, Friedemann Reinhard, Anke Lämmle, V. Richter, Rafi Kalish, Ulrika F. S. D'Haenens-Johansson, Mark Newton, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Increasing the coherence time of single electron spins in diamond by high temperature annealing. *Applied Physics Letters*, 97(24):-, 2010.

- [Pfe12] R. S. Pfeiffer. Optical microscopy and magnetic resonance with single color centers. Diplomarbeit, Institut f
 ür Quantenoptik, Universit
 ät Ulm, Sep 2012.
- [Poz12] D.M. Pozar. Microwave Engineering. Wiley, 2012.
- [RBSR91] D. A. Redman, S. Brown, R. H. Sands, and S. C. Rand. Spin dynamics and electronic states of n-v centers in diamond by epr and four-wave-mixing spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 67:3420–3423, Dec 1991.
- [RRT⁺06] J. R. Rabeau, P. Reichart, G. Tamanyan, D. N. Jamieson, S. Prawer, F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan, and J. Wrachtrup. Implantation of labelled single nitrogen vacancy centers in diamond using n15. Applied Physics Letters, 88(2):-, 2006.
- [SBW⁺14] Chang S. Shin, Mark C. Butler, Hai-Jing Wang, Claudia E. Avalos, Scott J. Seltzer, Ren-Bao Liu, Alexander Pines, and Vikram S. Bajaj. Optically detected nuclear quadrupolar interaction of ¹⁴N in nitrogen-vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. B*, 89:205202, May 2014.
 - [Sho97] P. W. Shor. Polynomial time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. *SIAMJ. Comput.*, 26:1484, 1997.
- [SLF⁺09] W. Schnitzler, N. M. Linke, R. Fickler, J. Meijer, F. Schmidt-Kaler, and K. Singer. Deterministic ultracold ion source targeting the heisenberg limit. *Phys. Rev. Lett.*, 102:070501, Feb 2009.
- [SMC09] Benjamin Smeltzer, Jean McIntyre, and Lilian Childress. Robust control of individual nuclear spins in diamond. *Phys. Rev. A*, 80:050302, Nov 2009.
- [SMN14] B. Scharfenberger, W. J. Munro, and K. Nemoto. Coherent control of an nv\$^-\$ center with one adjacent 13c. ArXiv e-prints, Apr 2014.
- [Spe89] Karl E. Spear. Diamond ceramic coating of the future. J. Am. Ceram. Soc., 72:171–191, 1989.
- [SPM⁺10] P. L. Stanwix, L. M. Pham, J. R. Maze, D. Le Sage, T. K. Yeung, P. Cappellaro, P. R. Hemmer, A. Yacoby, M. D. Lukin, and R. L. Walsworth. Coherence of nitrogen-vacancy electronic spin ensembles in diamond. *Phys. Rev. B*, 82:201201, Nov 2010.

- [Str12] F. T. Striebel. Engineering of diamond for integrated quantum optics and magnetometry. Masterthesis, Institut f
 ür Quantenoptik, Universit
 ät Ulm, 2012.
- [TCC⁺08] J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, and M. D. Lukin. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution. *Nature Physics*, 4:810–816, Sep 2008.
 - [Tin03] M. Tinkham. Group Theory and Quantum Mechanics. Dover Books on Chemistry and Earth Sciences. Dover Publications, 2003.
- [VYW⁺99] Rutger Vrijen, Eli Yablonovitch, Kang Wang, Hong Wen Jiang, Alex Balandin, et al. Electron spin resonance transistors for quantum computing in silicon-germanium heterostructures. 1999.
 - [Wal79] J Walker. Optical absorption and luminescence in diamond. *Reports on Progress in Physics*, 42(10):1605, 1979.
 - [Wei11] Stefan Weidlich. Nachweis der implantation einzelner ionen in festkörper. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, Dez 2011.
 - [WGGH] Stefan Wilhelm, Bernhard Gröbler, Martin Gluch, and Hartmut Heinz. Confocal laser scanning microscopy, principles of carl zeiss, stand 2014.
 - [Wil11] Jan Dominik Wildanger. Progress in stimulated emission depletion (STED) microscopy including the optical detection of magnetic resonances of single spins beyond the diffraction limit. PhD thesis, Heidelberg, Univ., Diss., 2011, 2011.
 - [Wit05] C. Wittmann. Kontrollierbare positionierung von defektzentren in diamant. Diplomarbeit, Universität Stuttgart, 2005.
- [WNH⁺11] G. Waldherr, P. Neumann, S. F. Huelga, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Violation of a temporal bell inequality for single spins in a diamond defect center. *Phys. Rev. Lett.*, 107:090401, Aug 2011.
 - [Wol12] Sebastian Wolf. Verfahren zur deterministischen, hochauflösenden implantation von farbzentren. Diplomarbeit, Institut für Physik, Universität Mainz, Okt 2012.

[YKKM91] S. Yugo, T. Kanai, T. Kimura, and T. Muto. Generation of diamond nuclei by electric field in plasma chemical vapor deposition. Applied Physics Letters, 58(10):1036–1038, 1991. Literaturverzeichnis

Eidesstattliche Erklärung

Ich versichere, dass ich meine Diplomarbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegeben 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.

16. September 2014

Johannes Verst