

Magnetometrie mit Diamant

Entwicklung eines Rastersondenmagnetometers unter
Verwendung eines Ensembles von
Stickstoff-Fehlstellen-Zentren im Diamantkristall als
Messsonde

Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Julius-Maximilians-Universität Würzburg

vorgelegt von

Franz Münzhuber

aus Würzburg

Würzburg 2015



Eingereicht am: _____

bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: _____

2. Gutachter: _____

3. Gutachter: _____

der Dissertation

Vorsitzender: _____

1. Prüfer: _____

2. Prüfer: _____

3. Prüfer: _____

im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: _____

Doktorurkunde ausgehändigt am: _____

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
I	Magnetometrie am Defekt-Ensemble	5
2	Das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum in Diamant	7
2.1	Fehlstellen in Diamant und ihre Verwendung	7
2.2	Elektronische Struktur des Stickstoff-Fehlstellen-Zentrums	9
2.3	Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld	14
2.4	Dynamisches Verhalten des Elektronenspins	20
3	Einfluss der Anregungspolarisation auf das Defekt-Ensemble	33
3.1	Einfluss der Laserpolarisation	33
3.2	Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen	38
3.3	Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen	49
II	Entwicklungsschritte hin zur Rastermagnetometrie	57
4	Entwicklung einer Mikrowellenantenne	59
4.1	Aufgabenstellung zur Entwicklung einer Antenne	59
4.2	Antennendesign, Simulation und Netzwerkanalyse	61
4.3	Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen	64
5	Nanostrukturierung von Diamanten	71
5.1	Stickstoffimplantation	72
5.2	Strukturierung von Diamantsäulen und optische Charakterisierung	75
5.3	Ablösen des Diamant-Cantilevers	83
6	Einsatz der Rastersondentechnologie	87
6.1	Einführung in die Rasterkraftmikroskopie	87
6.2	Vorcharakterisierung des Rastersondenaufbaus	89
6.3	Diamant als Rasterkraftsonde	94
7	Zusammenfassung und Ausblick	101

Inhaltsverzeichnis

Appendix	105
A.1 Versuchsaufbau für Mikrophotolumineszenzmessungen	105
A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rasterson- denmessungen	112
A.3 Herleitung des Hamiltonoperators im rotierenden Bezugssystem	120
Literaturverzeichnis	123
Liste wissenschaftlicher Beiträge	149
Englischsprachige Zusammenfassung	151
Danksagungen	153
Versicherung an Eides statt	155

Kapitel 1

Einleitung

Eines der ewig währenden Motive der physikalischen Grundlagenforschung ist die Untersuchung von magnetischen Phänomenen. Die Bemühungen um das Verständnis dieser Phänomene sind getrieben von deren allgegenwärtigem Vorkommen in der Natur und dem beständigen Wunsch, sie sich zu Nutze zu machen.

Experimente, in denen der Betrag oder die Richtung eines Magnetfelds zu bestimmten Zeiten oder an bestimmten Orten gemessen werden, stellen dabei sowohl den Ausgangspunkt für weiterführende Überlegungen als auch den finalen Richter dar, ob eine erstellte Theorie der realen Überprüfung standhält. Folglich war es schon immer und ist es auch heute noch von fundamentaler Bedeutung, die Grenzen der Nachweisbarkeit im Experiment so weit wie möglich nach unten zu treiben.

Die Grenzen können durch die Magnetfeldsensitivität und die räumliche Auflösung charakterisiert werden. Die Magnetfeldsensitivität beschreibt dabei, wie klein eine Änderung des zu messenden Magnetfelds sein darf, um von einem Sensor noch zuverlässig detektiert werden zu können. Da dies maßgeblich von der Messdauer abhängt, folgt die erreichbare Sensitivität aus dem Rauschpegel der Messung und wird daher oft mit diesem gleichgesetzt. Der Rauschpegel wird in der Einheit der $\text{THz}^{-0.5}$ angegeben. Unter der räumlichen Auflösung versteht man, wie groß der Bereich ist, über den der Sensor während der Messung mittelt.

Die Bandbreite der heute zur Verfügung stehenden Methoden zur Vermessung von Magnetfeldern mit einer räumlichen Auflösung im Bereich von Nanometern ist beeindruckend. All diese Methoden haben sich aus dem Bereich der Rastersondentechnologie [1,2] entwickelt, egal ob es sich dabei um die Magnetic Force Microscopy [3,4], Magnetic Resonance Force Microscopy [5,6], Scanning Hall Probe Microscopy [7,8] oder Scanning SQUID (*engl.* scanning **q**uantum **i**nterference **d**evice) Microscopy [9] handelt.

Dem stehen verschiedene optische Methoden der Magnetometrie gegenüber, die eine erheblich höhere Feldsensitivität erreichen, allerdings nicht vergleichbare räumliche Auflösungen bieten können. Die Erkenntnis, mit Licht die magnetischen Eigenschaften von verschiedenen Materialien zu untersuchen, geht bis auf die Arbeiten von Faraday [10] zurück. Durch die Entwicklung der Methode der optisch detektierten Magnetfeldresonanz (ODMR) [11–13] an atomaren Übergängen konnte die energeti-

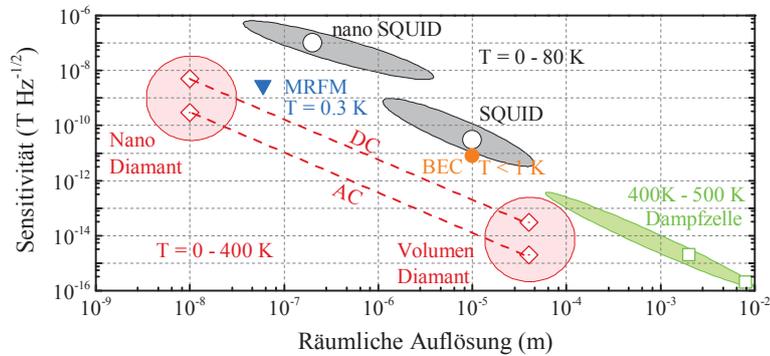


Bild 1.1: Vergleich zwischen Sensitivität und räumlicher Auflösung verschiedener Methoden der Magnetometrie, angelehnt an Ref. [24]. Zusätzlich ist der Temperaturbereich angegeben, in dem die Methoden anwendbar sind

sche Schmalbandigkeit von Radiofrequenz- (RF-) oder Mikrowellen- (MW-) Feldern, optischer Anregung und atomarer Energieniveaus zu vorher nicht bekannter Feldsensitivität kombiniert werden.

Heute dienen Dampfzellen als Sensoren, in die Atomgase von Alkalimetallen oder Edelgasen eingelassen werden. Die Sensoren erreichen Feldsensitivitäten im Bereich von wenigen $\text{fT Hz}^{-0.5}$ [14–16] bei einer Größe im Bereich von ca. 1 mm^3 und werden in Bereichen der Raumfahrt [17, 18], Geophysik [19] und Medizin [20] eingesetzt, in denen extrem schwache Signale verwertet werden müssen. Darüber hinaus wird die Sensitivität der Sensoren verwendet, um die Grenzen des Standardmodells zu überprüfen [21–23].

Die Größe der Dampfzelle ist aus technischen Gründen jedoch bislang nicht beliebig skalierbar. Dadurch ist die räumliche Auflösung in diesen Experimenten momentan nicht vergleichbar mit jener der Rastersondenmessungen, wie Bild 1.1 verdeutlicht.

In jüngster Zeit haben Kristalldefekte mit paramagnetischen Spinzuständen in verschiedenen Halbleitern eine Schnittstelle zwischen diesen beiden Methoden der Magnetometrie ermöglicht [25–32]. Da sie ortsfest in den Kristall eingebaut sind, ist eine genaue Positionierung der Störstelle möglich. Liegen die elektronischen Zustände des Defekts außerdem in der Bandlücke des Wirtsmaterials, ist die Wechselwirkung zwischen den Elektronen des Defekts und denen des Wirtsmaterials vernachlässigbar und die Störstelle kann als künstliches Atom betrachtet werden.

Der prominenteste Vertreter dieser Kristalldefekte ist zur Zeit das Stickstoff-Fehlstellen- (*engl.* Nitrogen-Vacancy-) Zentrum in Diamant. Verschiedene magnetometrische Experimente mit NV-Zentren haben bereits spektakuläre Ergebnisse erzielt. Stellvertretend sei an dieser Stelle auf die Detektion von einzelnen Protonenspins [33] und der Bewegung von Domänenwänden [34] sowie die Untersuchung von lebenden

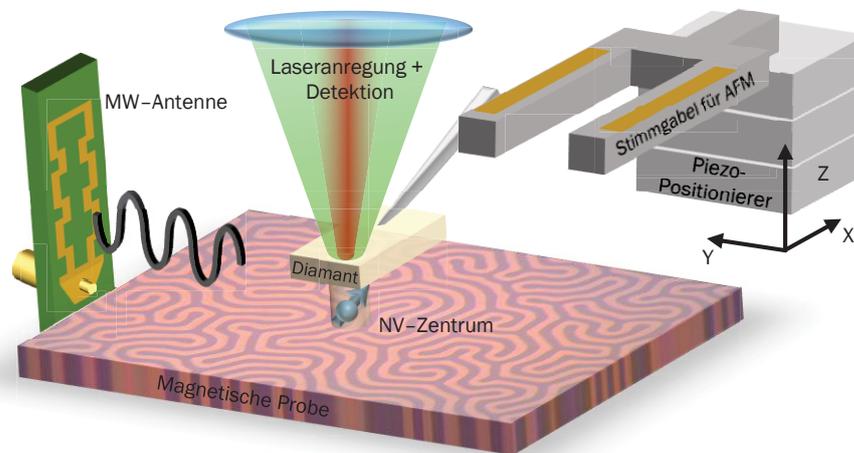


Bild 1.2: Schema des verfolgten Ansatzes: In der Spitze eines mikrostrukturierten Diamanten befinden sich ein oder mehrere NV-Zentren. Der Diamant wird mit der Spitze einer Stimmgabel verbunden, welche einen üblichen Sensor im Bereich der Rastersondentechnologie darstellt und dadurch eine hohe Positionsgenauigkeit der NV-Zentren während des Rasterns über die Oberfläche einer zu untersuchenden Probe sicherstellt. Über eine Linse kann das NV-Zentrum optisch angeregt und ausgelesen werden. Eine zusätzliche Antenne liefert das für die ODMR-Messung notwendige MW-Feld

Organismen [35] und neuronalen Zellen [36] hingewiesen.

Die Aufgabenstellung dieser Arbeit bestand darin, den Weg in Richtung eines auf NV-Zentren basierenden Magnetometers zu erschließen, um damit die magnetischen Eigenschaften von Festkörpersystemen wie verdünnte magnetische Halbleiter [37] oder topologische Isolatoren [38–41] zu untersuchen. Das finale Magnetometer soll in der Lage sein, in einer ersten Version die Geometrie von Magnetfeldern bei einer Amplitude von ca. $1\ \mu\text{T}$ mit einer räumlichen Auflösung deutlich im sub- μm -Bereich bei kryogenen Temperaturen ($\approx 4\ \text{K}$) zu vermessen. Leichte Modifizierungen am Aufbau sollen später die Sensitivität noch erhöhen können.

Der hierfür verwendete Ansatz basiert auf der zuerst von Sekatskii und Letokhov vorgeschlagenen Idee [42, 43], ein optisches Rastersondenmikroskop zu entwerfen, in dem das gerasterte Element aus einem Kristall besteht, der an seiner Spitze eine ODMR-aktive Störstelle besitzt. Die hohe Magnetfeldsensitivität der einzelnen Störstelle kann so mit der hohen Positionsgenauigkeit der Rastersondentechnologie kombiniert werden. In der vorliegenden Arbeit wird ein leicht abgewandeltes Konzept verfolgt, welches sich stark am von Maletinsky *et al.* verfolgten Ansatz anlehnt [44]. Anstelle einzelner Atome werden NV-Zentren in Diamant als Magnetfeldsensor verwendet, und an der Spitze einer Stimmgabel (*engl.* tuning fork) montiert, um damit durch Anwendung aktueller Methoden aus dem Feld der Rasterkraftmikroskopie die gewünschte Positionsgenauigkeit zu erhalten. Bild 1.2 verdeutlicht die zugrunde lie-

gende Idee.

Diese Arbeit gliedert sich entsprechend den geleisteten Entwicklungsschritten. Kapitel 2 handelt davon, die für die Magnetometrie entscheidenden Merkmale der NV-Zentren zu verstehen und das Arbeiten damit zu erlernen. Dabei wird auf die physikalische Natur der Zentren eingegangen und wie man deren Eigenschaften im Experiment überprüfen kann. Weiterhin wird demonstriert, welchen Einfluss externe Magnetfelder auf das ODMR-Signal haben.

Das dritte Kapitel widmet sich dem Zusammenspiel zwischen Anregung und Antwort der NV-Zentren. Es wird gezeigt, wie durch eine geeignete Wahl der Polarisation sowohl der optischen als auch der Mikrowellenanregung der Informationsgehalt des ODMR-Spektrums im äußeren Magnetfeld deutlich erhöht werden kann. Anhand der Untersuchung einer ferromagnetischen Mikrostruktur wird ein Verfahren zur orts aufgelösten Magnetometrie unter Ausnutzung der selektiven Anregung von NV-Zentren demonstriert.

Im vierten Kapitel steht die Entwicklung einer Mikrowellenantenne zur Manipulation der NV-Zentren im Vordergrund. Es wird zunächst ein Anforderungsprofil an die Antenne zusammengestellt und darauf aufbauend mit einer kommerziellen Software ein bestimmtes Antennendesign entworfen. Die daraus erstellte reale Antenne wird schließlich im Experiment eingesetzt und deren Abstrahlverhalten mit der Simulation verglichen.

Anschließend wird der Fokus darauf gelegt, wie aus einem künstlichen Diamanten höchster Reinheit der für unsere Anwendung geeignete Magnetfeldsensor strukturiert wird. Das hierfür notwendige Wechselspiel aus Implantationstechniken, lithographischer Prozessierung und optischer Charakterisierung ist Gegenstand von Kapitel 5.

Der nächste Teil der Arbeit, Kapitel 6, handelt von der verwendeten Rastersonden-Technologie. Darin werden zunächst die Grundzüge der Methode erläutert und die prinzipielle Funktionalität an verschiedenen Strukturen demonstriert. Zum Abschluss werden die ersten Ergebnisse mit der selbst entwickelten Diamantspitze präsentiert.

In Kapitel 7 werden die erzielten Ergebnisse nochmals zusammengefasst und ein Ausblick auf mögliche, an diese Arbeiten anknüpfende Weiterführungen und -entwicklungen gegeben.

Der Hauptteil der Arbeit konzentriert sich so auf die physikalischen Zusammenhänge und die selbst geleisteten Entwicklungen. Die Details der beiden im Rahmen dieser Arbeit zusammengestellten Versuchsaufbauten werden daher erst in einem Appendix im letzten Teil dieser Arbeit beschrieben.

Teil I

**Magnetometrie am
Defekt-Ensemble**

Kapitel 2

Das Stickstoff-Fehlstellen-Zentrum in Diamant

Der erste Teil dieser Arbeit widmet sich der theoretischen Beschreibung und experimentellen Charakterisierung des Stickstoff-Fehlstellen- (*engl.* Nitrogen-Vacancy-) Zentrums, dem Kernstück des geplanten Magnetometers.

Hierzu musste zunächst ein Versuchsaufbau zusammengestellt werden, in dem die verwendeten Geräte zur optischen Anregung und zur Erzeugung von Mikrowellenfeldern sowie die Detektoren je nach Anforderung im Experiment wahlweise im Dauerstrich - (*engl.* continuous wave) oder im gepulsten Modus betrieben werden können. Der Appendix A.1 liefert eine detaillierte Beschreibung des verwendeten Aufbaus. Sämtliche in diesem Kapitel gezeigte Messreihen wurden an diesem Aufbau durchgeführt.

2.1 Fehlstellen in Diamant und ihre Verwendung

Verunreinigungen in Diamant sind in enormer Anzahl bekannt und bereits seit langem Gegenstand zahlreicher Untersuchungen [45–47]. In den letzten drei Jahrzehnten hat sich das Interesse an bestimmten Kristalldefekten und Verunreinigungen enorm intensiviert. Einige Defekte wie Chrom- [48, 49], Nickel- [50, 51] und Siliziumbasierte Farbzentren [52–54] zeichnen sich als intensive Einzelphotonquellen bei Raumtemperatur aus und sind daher u.a. für die Quantenkryptographie von hohem Interesse [55, 56].

Daneben hat sich vor allem das NV-Zentrum als herausragendes Forschungsobjekt erwiesen. Nachdem zunächst optisch detektierte Magnetfeldresonanz- (ODMR-) Messungen am Ensemble von NV-Zentren durchgeführt wurden [57], konnte das Experiment auch an einzelnen Zentren wiederholt werden [25] und hat sich seitdem etabliert. Der Hauptgrund dafür ist, dass das einzelne NV-Zentrum viele der Kriterien erfüllt, die an einen geeigneten Kandidaten zur Realisierung eines festkörperbasierten Qubits, der kleinsten Funktionseinheit der Quanteninformatik [58] gestellt werden.

Angelehnt an DiVicenzo [59] muss ein solches System skalierbar, initialisierbar, manipulierbar und auslesbar sein sowie über Dekohärenzzeiten verfügen, die lang

2.1 Fehlstellen in Diamant und ihre Verwendung

gegen die typische Zeitskala der Manipulation des Systems sind.

Eine konkrete Umsetzung dieser Voraussetzungen im Festkörper benötigt ein Zweizustands-Quantensystem, wie beispielsweise zwei Spinzustände eines an eine Störstelle gebundenen Elektrons. Wie im folgenden Teil dieser Arbeit beschrieben wird, liefert das NV-Zentrum solche Zustände, die darüber hinaus entscheidende praktische Vorteile für die Umsetzung bieten.

Der Spinzustand des Zentrum kann optisch sowohl kontrolliert eingestellt werden als auch mit hoher Zuverlässigkeit ausgelesen werden. Die große Bandlücke des Diamanten und die hohen Reinheitsgrade, in denen Diamant kommerziell verfügbar ist, sorgen dafür, dass kaum zusätzliche Übergänge im Diamant, weder von anderen Defektzentren noch vom Wirtsmaterial selbst, optisch angeregt werden und damit das Signal beeinträchtigen könnten.

Der Energieunterschied zwischen den ungestörten Spinzuständen liegt im Bereich von wenigen GHz. Dieser Frequenzbereich des elektromagnetischen Spektrums, oft auch als Mikrowellenbereich bezeichnet, wird heute bereits in vielen anderen Fachgebieten verwendet, sodass entsprechende Signalquellen zur Manipulation einfach verfügbar sind. Da der Energieunterschied zusätzlich sehr stark von den lokalen Bedingungen wie Druck [60], Temperatur [61], elektrischen [62] und magnetischen Feldern [27, 28] abhängt, erhält man somit für diese Parameter ein auf einem Quantensystem basierenden Sensor.

Da die fundamentalen Eigenschaften unabhängig von der Umgebungstemperatur sind, sind alle Experimente grundsätzlich bei Raumtemperatur möglich. Der daraus folgende mögliche Verzicht auf kryogene Umfelder erleichtert das Arbeiten entsprechend und stellt einen bedeutenden Vorteil gegenüber vielen anderen Qubitsystemen dar [63–66]. Einzig verschiedene Siliziumfehlstellen in Siliziumcarbidkristallen zeigen zum gegenwärtigen Zeitpunkt vergleichbare Eigenschaften. Konsequenterweise rücken auch diese Defekte aktuell in den Forschungsfokus [29, 67, 68].

Die Konzentration der NV-Zentren im Diamant ist abhängig von der Wahl des Ausgangsmaterials und der weiteren Bearbeitung. Das Ausgangsmaterial kann in den Kategorien Ia, Ib und IIa erworben werden, wobei die Kategorie die Konzentration an Stickstoffverunreinigungen in absteigender Reihenfolge angibt [69]. Während Diamanten der Kategorie Ia einen Stickstoffgehalt von bis zu 0.3 % besitzen, beträgt der Anteil in Ib-Diamanten nur noch bis zu 0.05 %. In kommerziellen IIa-Diamanten wird ein Stickstoffgehalt von weniger als 0.001 % spezifiziert.¹ Die gängigen Herstellungsmethoden für synthetischen Diamant sind entweder das Hochdruck-Hochtemperatur-Verfahren (*engl.* **H**igh **P**ressure **H**igh **T**emperature) für Diamanten des Typs Ib oder das Wachstum mittels chemischer Gasphasenabscheidung (*engl.* **C**hemical **V**apor **D**eposition) für Diamanten des Typs IIa. Besonders reine CVD-Diamanten

¹Diamanten in der darüber hinaus verfügbaren Kategorie IIb haben einen vergleichbaren Stickstoffgehalt wie Diamanten der Kategorie IIa, sind allerdings aufgrund einer erheblichen Dotierung mit Bor-Ionen als p-leitende Halbleiter anzusehen.

werden häufig mit dem Zusatz *electronic grade* versehen [70]. In diesen Kristallen sind die Abstände zwischen einzelnen NV-Zentren bereits größer als die erreichbare optische Auflösung, sodass einzelne Defektzentren untersucht werden können [71, 72].

Darüber hinaus können reine Diamanten durch Ionenimplantationstechniken gezielt mit Stickstoff verunreinigt werden [73]. Während der Implantation entstehen zusätzliche Fehlstellen im Kristall durch Strahlungsschäden. Setzt man den Diamanten Temperaturen von ca. 800°C aus, werden Fehlstellen im Kristall mobil und können sich mit dem Stickstoff zu den gewünschten NV-Zentren verbinden [74]. Da die laterale Position des Ionenimplantationsstrahls mit einer Genauigkeit von besser als 1 µm kontrolliert werden kann, erlaubt dies in Diamantproben der höchsten verfügbaren Reinheit eine extrem genaue Positionierung (besser als 1 µm²) der vorhandenen NV-Zentren, sodass diese gemäß den Anforderungen im Experiment angeordnet werden können.

2.2 Elektronische Struktur des Stickstoff-Fehlstellen-Zentrums

Im Diamantgitter besetzen die Kohlenstoffatome die Gitterplätze zweier kubisch-flächenzentrierter Raumgitter, die um ein Viertel einer Raumdiagonale gegeneinander verschoben sind. Jedes Kohlenstoffatom ist entsprechend von vier nächsten Nachbarn umgeben. Durch die Hybridisierung der Atomorbitale der äußersten Schale kann jedes Kohlenstoffatom vier Elektronen bereitstellen, sodass mit jedem der nächsten Nachbarn kovalente Bindungen eingegangen werden können. Daraus folgt sofort, dass im reinen Diamant keine freien Elektronen zur Verfügung stehen. Die hohe Bandlücke von $E_{gap} \approx 5.3 \text{ eV}$ begründet die Einteilung als Isolator bei Raumtemperatur.

Das für das NV-Zentrum namensgebende Stickstoffatom sitzt im Diamantgitter auf einem Kohlenstoffplatz und besitzt anstelle der üblichen vier Kohlenstoffatome als nächste Nachbarn nur drei sowie eine Fehlstelle (siehe Bild 2.1). Die Fehlstelle ihrerseits ist ebenfalls von drei Kohlenstoffatomen umgeben, die jeweils ein ungepaartes Elektron zur Verfügung stellen. Da Stickstoffionen aufgrund ihrer Elektronenkonfiguration als Donator in Diamant agieren, sind zwei weitere Elektronen für den NV-Komplex verfügbar.

Ein NV-Komplex, der nur über die beschriebenen fünf Elektronen verfügt, wird im Allgemeinen als NV⁰-Zentrum bezeichnet. Weitere Verunreinigungen in der Umgebung des Komplexes [75, 76] können ein zusätzliches Elektron zur Verfügung stellen, sodass der Komplex eine negative Gesamtladung erhält und daher als NV⁻-Zentrum bezeichnet wird. Ein kontrolliertes Wechseln zwischen diesen beiden Ladungszuständen eines NV-Zentrums ist sowohl optisch als auch elektrisch möglich [77, 78], beim Arbeiten mit einem Ensemble von NV-Zentren aber nicht notwendig, da sich immer

ausreichend viele Zentren im gewünschten Zustand befinden. Da der NV-Komplex erst in der Konfiguration mit sechs Elektronen zum manipulierbaren Quantensystem wird, bezieht sich die Literatur zum Thema beinahe vollständig auf diesen Ladungszustand. Daher ist auch in dieser Arbeit immer der negative Ladungszustand gemeint, wenn von NV-Zentren die Rede ist.

Die Raumrichtung, die vom Stickstoffatom zur Fehlstelle zeigt, wird im Weiteren als NV-Achse bezeichnet und gibt die Orientierung des NV-Zentrums vor. Man erkennt in Bild 2.1 (a), dass das umgebende Diamantgitter für Drehungen um Vielfache von 120° um die NV-Achse invariant ist. Auch für Spiegelungen an Ebenen, die die NV-Achse und einen der nächsten Kohlenstoffnachbarn enthalten, lässt sich das Diamantgitter auf sich selbst abbilden. Diese Symmetrien sind in der Gruppentheorie in der Punktgruppe C_{3v} in Schoenflies-Notation zusammengefasst (siehe z.B. Ref. [79]). Daraus lassen sich Rückschlüsse auf die erlaubten Elektronenorbitale sowie deren Energiekonfiguration ziehen.

Eine ausführliche gruppentheoretische Beschreibung der elektronischen Eigenschaften des NV-Zentrums kann in den Referenzen [80–82] gefunden werden.

Im energetisch günstigsten Zustand sind jeweils zwei der sechs Elektronen in niedrigen Orbitalen a_1 und a_1' gepaart, während die verbleibenden Elektronen ungepaart in zwei unterschiedlichen, energetisch höheren Orbitalen e_x und e_y sind. Dieser Zustand wird als 3A_2 gekennzeichnet (Bild 2.1 (b)).

Die parallele Ausrichtung der Spins der ungepaarten Elektronen führt zu einem Gesamtspin des Systems von $S = 1$ mit der Multiplizität $2S + 1 = 3$. Daraus folgen drei unabhängige Eigenzustände, die anhand ihrer Projektion m_S entlang der NV-Achse unterschieden werden können und als $|m_S = 1, 0, -1\rangle$ bezeichnet werden. Eine Wechselwirkung zwischen den beiden einzelnen Spins führt zu einer Nullfeldaufspaltung zwischen den verschiedenen Zuständen, sodass der antiparallele Zustand $|m_S = 0\rangle$ energetisch am günstigsten ist [80]. Um die beiden Spins parallel auszurichten, muss eine zusätzliche Energie von etwa $E = h \times 2.87 \text{ GHz}$ ($= 11.4 \mu\text{eV}$) aufgebracht werden. Die parallelen Zustände $|m_S = -1\rangle$ und $|m_S = 1\rangle$ sind im Nullfeld entartet. Dabei gibt m_S die Projektion des Elektronenspins entlang der NV-Achse an.

Eine optische Anregung des Systems hebt eines der gepaarten Elektronen in ein Orbital der vormals ungepaarten Elektronen (gruppentheoretische Bezeichnung 3E). In dieser Konfiguration verfügt das System immer noch über zwei ungepaarte Elektronen, die wieder ein Triplett bilden. Diese direkten Übergänge zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand sind Spin-erhaltend, da der Drehimpuls des anregenden Photons für die Änderung des orbitalen Drehimpulses benötigt wird [83].

Die direkte Rekombination kann auch in einem Franck-Condon-Bild beschrieben werden [84], wie es in Bild 2.1 (c) dargestellt ist. Sowohl der Grund- als auch der angeregte Zustand sind in mehrere Vibrationszustände unterteilt. Der Übergang zwischen den beiden niedrigsten Schwingungszuständen (*engl. Zero Phonon Line*) findet bei einer Energie von etwa 1.94 eV statt. Zusätzlich gibt es eine Reihe von Übergängen

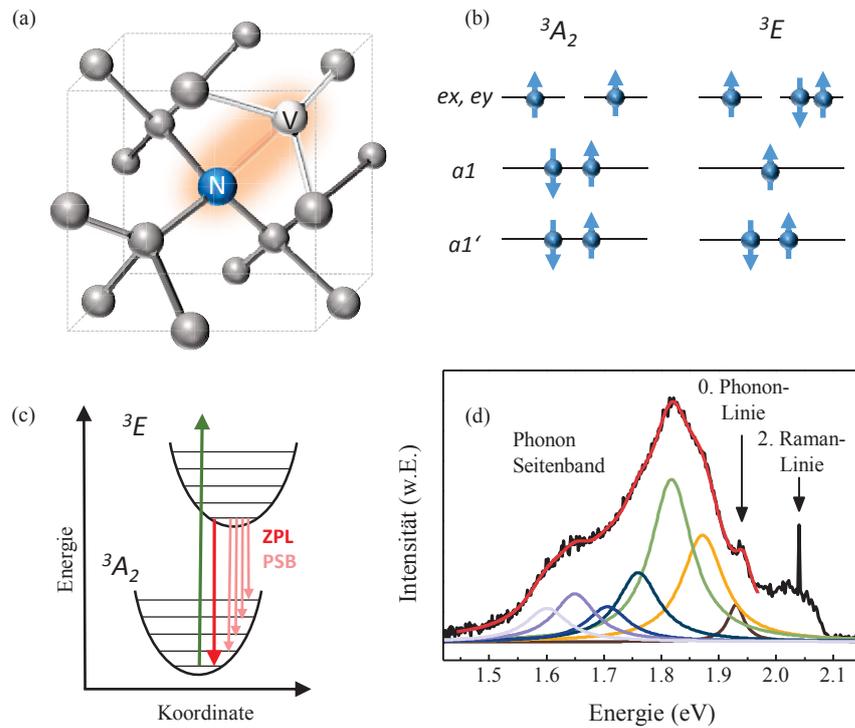


Bild 2.1: (a) Schematische Ansicht des Diamantkristalls und der Lage des NV-Zentrums im Gitter. Die Verbindung zwischen Stickstoff (blau) und Fehlstelle (weiß) wird als NV-Achse bezeichnet. Kohlenstoffatome und gewöhnliche kovalente Bindungen sind in grau dargestellt; die durch die Fehlstelle aufgebrochenen Bindungen in weiß. (b) Energieschema der Elektronenkonfiguration im Grundzustand 3A_2 und im angeregten Zustand 3E . (c) Schematische Darstellung des direkten Übergangs zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand. Eingezeichnet sind sowohl die nicht resonante Anregung in grün als auch die möglichen Rekombinationswege in rot. (d) Schwarz: Photolumineszenzspektrum (PL-Spektrum) unter cw-Anregung eines Single Crystal CVD Diamanten bei einer Anregungsenergie von 2.35 eV. Rot: Summe der verschiedenen Phononenbeiträge (in bunt). Die einzelnen Beiträge sind dabei äquidistant in ihrer energetischen Position und verdeutlichen die Phononenstruktur des gesamten Lumineszenzspektrums. Im Bereich von etwa $E > 1.95$ eV sind Beiträge der NV^0 -Zentren zu erkennen. Bei der Messung wurde ein 600 nm-Langpass eingesetzt, sodass oberhalb von etwa $E = 2.06$ eV kein Signal detektiert wird

zwischen dem niedrigsten Schwingungszustand des angeregten in die verschiedenen Zustände des Grundniveaus, die bei niedrigeren Energien stattfinden. Diese Übergänge bezeichnet man zusammen als Phononseitenband (PSB).

Bild 2.1 (d) zeigt ein typisches NV-Photolumineszenzspektrum (PL-Spektrum) sowie seine spektrale Zerlegung in die einzelnen Phononenbeiträge. Zusätzlich zum beschriebenen Lumineszenzband zwischen 1.94 eV und 1.5 eV erkennt man eine scharfe Linie bei etwa 2.03 eV. Der Abstand zur Laseranregungsenergie entspricht mit $\Delta E = 320 \text{ meV}$ der zweifachen Energie des longitudinal-optischen Phonons in Diamant. Die Linie lässt sich daher eindeutig als zweite Stokes-Raman-Linie identifizieren.

Weiterhin erkennt man einen breiten Untergrund oberhalb der ZPL bis zur Bandkante des verwendeten 600 nm-Langpasses, welcher sich auf Signalbeiträge von NV^0 -Zentren zurückführen lässt. Die Energie des ZPL-Übergangs der ungeladenen NV^0 -Zentren beträgt $E = 2.16 \text{ eV}$. Dies liegt unterhalb der verwendeten Anregungsenergie, sodass diese Übergänge ebenfalls angeregt werden.

Für die Spinzustände $| -1 \rangle$ und $| 1 \rangle$ des angeregten Zustands 3E ist zusätzlich zu der direkten auch eine Rekombination über zwei Singulett-Zustände möglich [87,88]. Dabei wird ein Photon abgegeben, welches sich in seiner Energie deutlich von der unterscheidet, die bei der Rekombination zwischen den Triplett-Zuständen frei wird (siehe Bild 2.2 (a)). Das Besondere an diesen Singulett-Zuständen ist die Tatsache, dass das System nach dem Durchlaufen eines Zyklus bestehend aus optischer Anregung und Rekombination seinen Zustand von $|\pm 1\rangle$ zu $|0\rangle$ mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit geändert hat, obwohl die optische Anregung keine direkten Übergänge zwischen einem $|0\rangle$ - und einem $|\pm 1\rangle$ -Zustand induzieren kann.

Da es keine weiteren Zustände gibt, über die das System seinen Zustand von $|0\rangle$ zu $|\pm 1\rangle$ ändern kann, folgt daraus, dass der Spinzustand des Systems optisch einstellbar ist. Nach einer hinreichenden Anzahl an durchlaufenen Zyklen kann das System mit hoher Wahrscheinlichkeit in den Zustand $|0\rangle$ polarisiert werden.

Umgekehrt lässt sich auch optisch überprüfen, in welchem Zustand das System sich befindet. Die Intensität der Lumineszenz zwischen 1.4 eV - 2 eV ist niedriger, wenn sich das System im Zustand $|\pm 1\rangle$ befindet, da das System dann auch über die Zwischenzustände rekombinieren kann, wobei kein Photon im angegebenen Energiebereich detektiert werden kann.

Um dieses Verhalten zu demonstrieren, benötigt man neben der optischen Anregung einen weiteren Stimulus, um Übergänge zwischen $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$ zu provozieren. Ein Mikrowellenfeld mit der passenden Frequenz von 2.87 GHz stellt ausreichend Energie zur Verfügung, um den Spinzustand im Grundzustand zu ändern.

Die Manipulation der Spinzustände ist prinzipiell auch im angeregten Zustand auf der deutlich niedrigeren MW-Frequenz von $\nu = 1.42 \text{ GHz}$ möglich. Die begrenzte Zeit, die für die Manipulation zur Verfügung steht, verkompliziert diese jedoch erheblich. In Bild 2.2 (b) wird in einer zeitaufgelösten Messung eine Zerfallszeit von

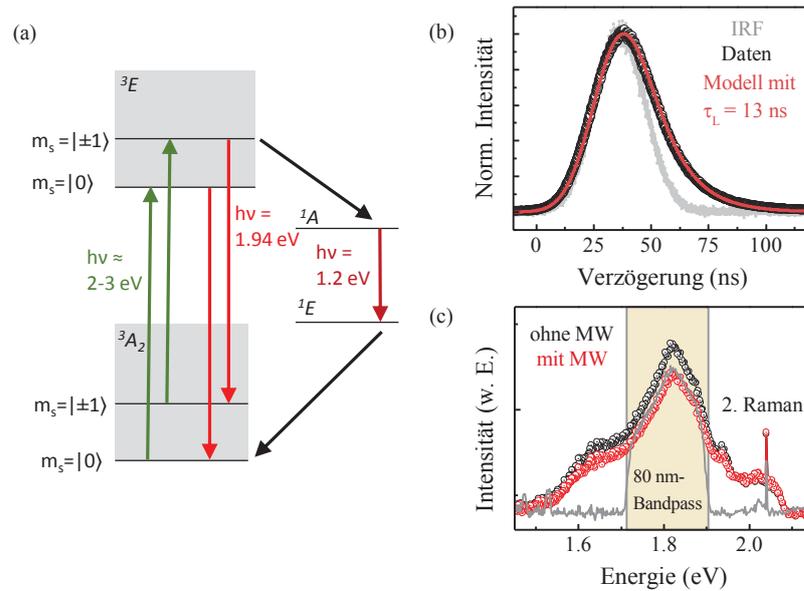


Bild 2.2: (a) Schematische Übersicht über die Struktur der Energieniveaus des NV-Zentrums unter Berücksichtigung der verschiedenen Spinzustände. Die Aufspaltung zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$ beträgt im Grundzustand etwa 2.87 GHz und im angeregten Zustand etwa 1.42 GHz. Die optische Anregung (grün) ist dabei nicht wie angedeutet resonant mit der Energiedifferenz zwischen Grund- und angeregtem Zustand, sondern hebt das Elektron in ein Quasikontinuum (vgl. Bild 2.1 (c)). Während der nachfolgenden Relaxation auf niedrigere Zustände des Quasikontinuums bleibt der Spin jedoch erhalten, sodass die optische Anregung letztlich nur Übergänge jeweils zwischen zwei $|0\rangle$ - oder zwei $|\pm 1\rangle$ -Zuständen induziert. Die durch schwarze Pfeile angedeuteten Übergänge zwischen den Triplett und Singulett-Zuständen sind Beispiele von nicht strahlenden Übergängen zwischen Zuständen unterschiedlicher Multiplizität (*engl.* intersystem crossing) und werden durch eine Kombination von Spin-Bahn- und Elektron-Phonon-Wechselwirkungen verursacht [85, 86]. (b) Schwarz: Zeitaufgelöstes PL-Signal im CVD Diamant. Grau: Antwortfunktion der Instrumente (IRF). Rot: Modellierter monoexponentieller Zerfall mit einer Zerfallszeit von $\tau_L = 13$ ns bei der gegebenen IRF. (c) CW-Spektren der NV-Zentren mit (rot) und ohne (schwarz) eingestrahlte Mikrowellen (MW). In grau ist der von einem (690 ± 40) nm-Bandpass transmittierte Anteil des Spektrums dargestellt. Im weiteren Teil dieser Arbeit wird nur noch dieser Anteil detektiert

2.3 Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld

$\tau_L = 13$ ns für das PL-Signal bestimmt. Dieser Wert entspricht exakt dem typischen Wert für die Lebensdauer des angeregten Zustands des NV-Zentrums in makroskopischen Diamanten [89].

Wie jedoch in den folgenden Kapiteln gezeigt wird, ist eine Manipulation der Zustände auf dieser Zeitskala nur schwierig umzusetzen. So würden u.a. extrem starke MW-Felder benötigt werden, die nur schwer zu realisieren sind. Auch ist jede Information, die im Zustand des Systems eventuell gespeichert ist, nach wenigen Nanosekunden durch die Rekombination unwiderruflich verloren. Dies hebt den Vorteil der kostengünstigeren Signalquellen deutlich auf, sodass innerhalb dieser Arbeit nur die Spinzustände im Grundzustand 3A_2 manipuliert werden. Konsequenterweise beziehen sich im Rest dieser Arbeit die Bezeichnungen $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$ immer auf die Spinzustände des Grundzustands 3A_2 .

Bild 2.2 (c) zeigt die Antwort der NV-Zentren auf eine gleichzeitige optische und resonante MW-Anregung. Die Intensität der Beiträge, die von den ungeladenen NV^0 -Zentren verursacht werden, bleibt unverändert. Auch die Form des Spektrums verändert sich nicht. Dies rechtfertigt den Verzicht auf die spektrale Auflösung bei den meisten Arbeiten mit negativ geladenen NV^- -Zentren. Stattdessen wird nur mit einem Bandpass der Großteil des NV^- -Signals transmittiert und so von der Anregung und anderen Beiträgen getrennt.

Man erkennt deutlich die Änderung der Lumineszenzintensität der geladenen NV-Zentren. Da ein externes Magnetfeld die Energie der $|\pm 1\rangle$ -Zustände beeinflusst, die Energie des $|0\rangle$ -Zustands jedoch nicht, ändert sich die für die Übergänge $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$ benötigte MW-Frequenz entsprechend dem Magnetfeld. Dies bildet das Fundament der ODMR-Messungen an NV-Zentren in Diamant.

2.3 Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld

Die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Spinzuständen und einem externen Magnetfeld wird durch den Hamiltonoperator des Spins beschrieben. Für Felder entlang der NV-Achse (hier weiterhin als z -Richtung gekennzeichnet) reduziert sich der Hamiltonoperator zu [24]

$$\mathcal{H} = D\hat{S}_Z^2 + E(\hat{S}_X^2 - \hat{S}_Y^2) + g\mu_B B_{ext}\hat{S}_z + A\hat{S}_Z\hat{I}_Z + P\hat{I}_Z^2. \quad (2.1)$$

Dabei repräsentiert D die Nullfeldaufspaltung von 2.87 GHz, g den g -Faktor des Elektrons und μ_B das Bohrsche Magneton. Der dritte Term ist eine Folge der lokalen Symmetriebrechung in der Umgebung des NV-Zentrums durch weitere Kristalldefekte. Der Parameter E wird als transversale Nullfeldaufspaltung bezeichnet und ist in der Regel zwei bis drei Größenordnungen kleiner als D . In den letzten beiden Termen

2.3 Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld

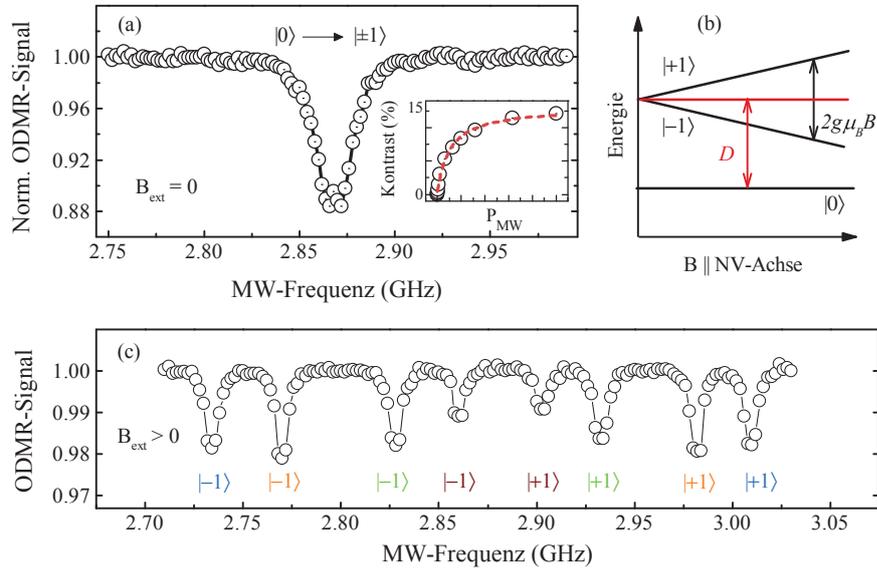


Bild 2.3: (a) Normiertes ODMR-Spektrum ohne externes Magnetfeld. Einschub: Abhängigkeit des ODMR-Kontrasts von der Mikrowellenleistung im Nullfeld. (b) Schematische Zeeman-Aufspaltung der $|\pm 1\rangle$ -Zustände im Magnetfeld. (c) Normiertes ODMR-Spektrum im externen Magnetfeld. Die Richtung des Magnetfelds ist so gewählt, dass die Entartung für die verschiedenen NV-Orientierungen aufgehoben ist. Resonanzen, die zu den $|0\rangle \rightarrow |\pm\rangle$ -Übergängen der gleichen Orientierung gehören, sind in der gleichen Farbe gekennzeichnet

wird der Elektronenspin S zusätzlich über die Austauschkonstante A an den Kernspin I des Stickstoffs gekoppelt sowie das nukleare Quadrupolelement des Stickstoffs berücksichtigt.

Für keine oder vernachlässigbar kleine externe Magnetfelder B_{ext} dominiert der erste Term in Gleichung 2.1 die Energie der Übergänge. Bild 2.3 (a) zeigt ein typisches Nullfeld-cw-ODMR-Spektrum eines Ensembles von NV-Zentren. Da ohne externe Felder sowohl die Übergänge $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$ als auch die Übergänge $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ aller vier NV-Orientierungen bei der nahezu identischen MW-Frequenz angeregt werden, ist die zu beobachtende Resonanz das Ergebnis von acht unterschiedlichen Beiträgen.

Der Kontrast im ODMR-Signal hängt bei gegebener Laseranregung von der Intensität des Mikrowellenfeldes ab und folgt einer Sättigungskurve. Der Einschub in Bild 2.3 (a) zeigt die Änderung des ODMR-Signals bei Variation der Leistung des angelegten MW-Feldes. Der maximal erreichbare Kontrast innerhalb der dargestellten Messreihe liegt bei etwa 15%. Durch eine Kombination von niedrigerer Intensität der Laseranregung, höherer Mikrowellenintensität und reineren Diamantproben können sogar Kontrastwerte von über 30% erreicht werden [90].

Die transversale Nullfeldaufspaltung E hebt die Entartung zwischen den $|\pm 1\rangle$ -

2.3 Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld

Zuständen im Nullfeld auf, sodass die Resonanz in Bild 2.3 (a) bei genauerer Betrachtung aus zwei Beiträgen besteht, die um wenige MHz gegeneinander verschoben sind. Die Aufspaltung ist eine Folge von Verspannungen und lokalen elektrischen Feldern am Ort der einzelnen NV-Zentren, die von einer Brechung der C_{3v} -Symmetrie des Defekts verursacht werden. Die Größe der Aufspaltung ist daher ein Zeichen für die Qualität des Diamantkristalls und kann zwischen < 1 MHz [25] in ungestörten Kristallen und 20 MHz [91] in Nanokristallen variieren.

Im dritten Term in Gleichung 2.1 erkennt man den Zeeman-Beitrag zur Übergangsenergie. Dieser hat allerdings nur Auswirkungen auf die Zustände $|\pm 1\rangle$, weswegen nur diese Zustände eine Energieverschiebung im Magnetfeld erfahren. Da sich die Energie des Zustands $|0\rangle$ nicht verändert, verschiebt sich die Resonanzfrequenz der Übergänge $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$ und $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ in Abhängigkeit des externen Magnetfelds. Dieser Mechanismus stellt das Grundprinzip der NV-basierten Magnetometrie dar.

Die spektrale Position der Übergänge $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$ im äußeren Magnetfeld ergibt sich damit zu [80, 92]

$$\nu_{|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle} = 2.87 \text{ GHz} \pm \sqrt{E^2 + (g\mu_B B_{ext}/2\pi)^2}. \quad (2.2)$$

Im Fall einer vernachlässigbaren transversalen Nullfeldaufspaltung $E = 0$ verschiebt sich folglich die Resonanzfrequenz bei einer Magnetfeldänderung von 1 mT um etwa 27 MHz.

Der Betrag der Energieverschiebung im äußeren Magnetfeld hängt dabei nicht von der Gesamtstärke des Magnetfelds ab, sondern nur von der Komponente des Magnetfelds entlang der NV-Achse. Ein Magnetfeld, welches unterschiedlich lange Projektionen entlang jeder der vier NV-Orientierungen besitzt, führt folglich zu einem ODMR-Spektrum wie in Bild 2.3 (c), in dem alle acht möglichen Übergänge sichtbar werden. Für den Fall, dass die Zuordnung zwischen den Resonanzen und Übergängen bekannt ist, können alle Komponenten eines unbekanntes Magnetfeldvektors direkt aus dem ODMR-Spektrum bestimmt werden [30, 93, 94].

Bei niedrigen MW-Leistungen und hoher Frequenzauflösung erkennt man in Bild 2.4 (a) auf den einzelnen Übergängen eine deutliche Hyperfeinstruktur, bestehend aus drei einzelnen Resonanzen. Diese sind das Resultat der Wechselwirkung zwischen dem Elektronenspin des NV-Zentrums und dem Kernspin des Stickstoffatoms sowie dessen Kernmoments. Natürlich eingebauter Stickstoff liegt hauptsächlich als ^{14}N -Isotop vor und besitzt daher einen Kernspin von $I = 1$. Aus den in Bild 2.4 (b) dargestellten Aufspaltungen der Kernspinniveaus ergeben sich entsprechend die drei Übergänge, da bei den Übergängen $|m_S = 0\rangle \rightarrow |m_S = \pm 1\rangle$ der Kernspin erhalten bleibt [95].

Eine Kopplung des Elektronenspins an den Kernspin anderer Gitteratome ist ebenfalls möglich. Da der Kohlenstoff jedoch in den vorliegenden Proben zu etwa 99 % im kernspinlosen ^{12}C -Isotop vorliegt, reicht eine Betrachtung des Stickstoffkernspins in

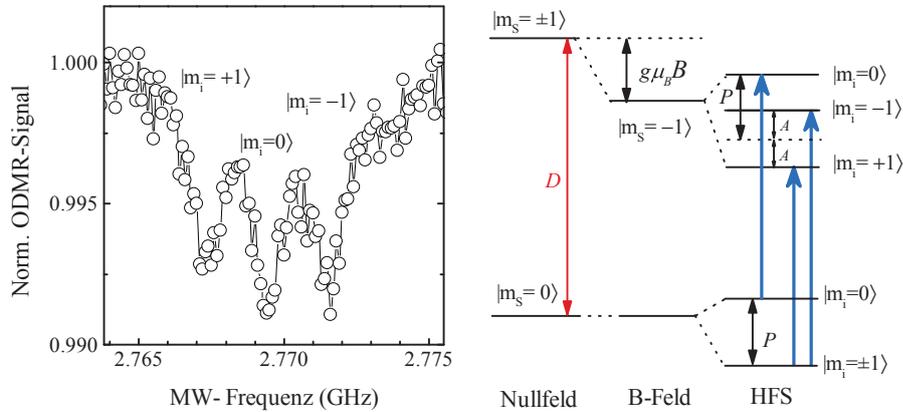


Bild 2.4: Normiertes ODMR-Spektrum eines Übergangs aus Bild 2.3 in hoher Frequenzaufösung, in dem die Hyperfeinstruktur durch die Wechselwirkung mit den Kernspinzuständen der ^{14}N -Stickstoffionen sichtbar ist. (b) Schematische Hyperfeinstruktur-Aufspaltung des $| -1 \rangle$ -Zustands im äußeren Magnetfeld mit den erlaubten Übergängen (blau)

diesem Fall völlig aus. Kopplungen an den Kernspin von ^{13}C -Isotopen sind allerdings Gegenstand aktueller Untersuchungen [96, 97]. Dabei wird versucht, die Spininformation aus dem Elektronenspin in das Kernspinsystem zu übertragen, um es dort zu speichern und später wieder auszulesen.

Der unterschiedliche Kernspin der Stickstoffisotope ^{14}N und ^{15}N kann genutzt werden, um anhand des ODMR-Spektrums von einzelnen NV-Zentren zwischen natürlich und künstlich eingebautem Stickstoff zu unterscheiden [98]. Der Grund dafür ist, dass natürlich eingebauter Stickstoff zu mehr als 99.6% in der Konfiguration ^{14}N vorliegt, und daher in guter Näherung alle beobachteten ^{15}NV -Zentren künstlich eingebauten Fehlstellen zugeordnet werden können. Darüber hinaus hat das Isotop ^{15}N den Vorteil der größeren Wechselwirkungskonstante A , sodass die Kernspinniveaus spektral weiter auseinander liegen [99].

Die Abhängigkeit der Resonanzfrequenzen vom externen Magnetfeld ist in Bild 2.5 für Magnetfelder von -5 mT bis 5 mT dargestellt. Man erkennt, dass für jeden Betrag des Magnetfeldes ein eindeutiges ODMR-Spektrum existiert. Allerdings sind die Spektren bei einem Vorzeichenwechsel des äußeren Magnetfeldes ununterscheidbar. Dies stellt eine klare Einschränkung der Methode dar, da das Vorzeichen des Magnetfeldes folglich nicht bestimmt werden kann. Wenn es das Experiment zulässt, kann jedoch ein bekanntes Magnetfeld B_0 dem zu vermessenden Feld B_1 überlagert werden.

Im bekannten äußeren Feld B_0 lassen sich zunächst die Resonanzfrequenzen der unterschiedlichen NV-Orientierungen berechnen. Damit können die einzelnen Über-

2.3 Energiestruktur der Spinzustände im Magnetfeld

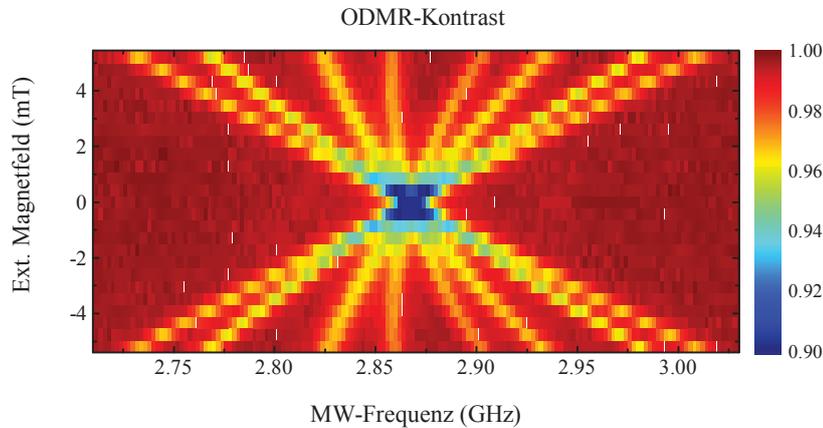


Bild 2.5: ODMR-Signal bei variierendem Magnetfeld. Horizontale Schnitte durch das Bild entsprechen einzelnen ODMR-Spektren wie in Bild 2.3 (c). Die Richtung des Magnetfelds ist so gewählt, dass die zu den verschiedenen NV-Orientierungen gehörenden Übergänge voneinander zu unterscheiden sind

gänge im Spektrum identifiziert werden. Anschließend bildet man die Superposition von B_0 und B_1 , und aus den Verschiebungen der einzelnen Resonanzfrequenzen kann die Änderung der unterschiedlichen Magnetfeldkomponenten durch B_1 direkt bestimmt werden (siehe z.B. Ref. [94]).

Eine weitere Auffälligkeit in den Daten von Bild 2.5 ist die leichte Krümmung des Verlaufs der Resonanzfrequenzen zu höheren Frequenzen bei größer werdenden Magnetfeldern. Die Krümmung ist stärker für die Übergänge, die sich insgesamt am wenigsten im Magnetfeld verschieben. Der Grund dafür ist, dass bei transversalen Feldern die Quantisierungsachse nicht mehr entlang der NV-Achse, sondern entlang des äußeren Magnetfeld zeigt. Für die Übergänge, die sich nur wenig im Magnetfeld verschieben, ist der transversale Anteil für diese NV-Orientierungen maximal. Als Folge davon durchmischen die Zustände $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$, und die im Spektrum beobachteten Resonanzen folgen nicht linear dem äußeren Magnetfeld [100]. Der Effekt tritt in allen Experimenten auf, in denen die Antwort eines Ensembles von unterschiedlich orientierten NV-Zentren auf ein äußeres Magnetfeld gemessen wird [92, 93, 101], obwohl er manchmal bewusst übergangen wird [102].

Eine weitere Schwierigkeit bei der Bestimmung von absoluten Magnetfeldern besteht in der Temperaturabhängigkeit der Nullfeldaufspaltung [61, 103–105]. Vermutlich wird diese durch eine Kombination aus thermischer Ausdehnung bzw. Kompression und einer Elektron-Phonon-Wechselwirkung verursacht [106]. Der Effekt ist mit etwa $70\text{--}80\text{ kHz K}^{-1}$ bei Raumtemperatur stark genug, um mit dem NV-Zentrum Temperaturunterschiede im mK-Bereich zu detektieren [107]. Umgekehrt bedeutet dies allerdings, dass eine Variation der Umgebungstemperatur von nur 1 K zu einer Verschie-

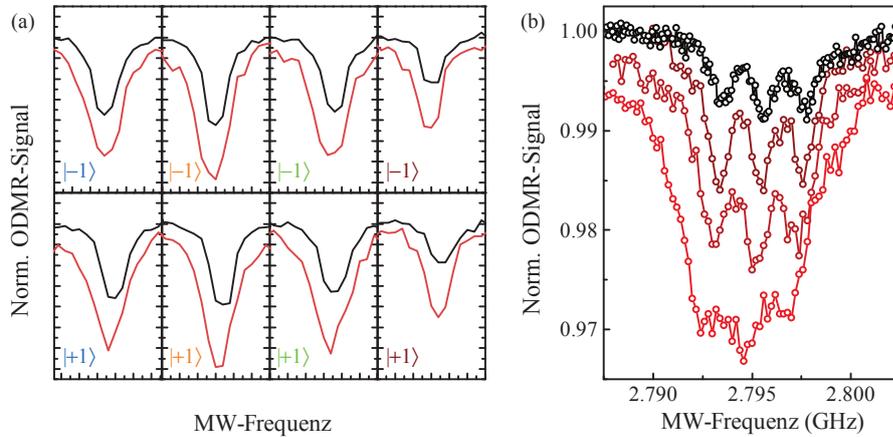


Bild 2.6: (a) ODMR-Signal der $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$ -Übergänge aller vier NV-Orientierungen bei niedriger (schwarz) und hoher MW-Leistung (rot). Man erkennt auf allen Übergängen eine Verschiebung zu niedrigeren Frequenzen. (b) ODMR-Signal eines einzelnen Übergangs mit besserer Frequenzauflösung

bung der Resonanzfrequenzen führt, die der von einem etwa $3\mu\text{T}$ starken Magnetfeld entspricht.

Die experimentellen Konsequenzen sind in Bild 2.6 dargestellt. Eine Erhöhung der Mikrowellenleistung erwärmt die verwendete Antenne aufgrund Joulescher Wärmeentwicklung. Befindet sich der Diamant in unmittelbarer Nähe, erwärmt dies auch den Diamanten. Die Verschiebung der Resonanzfrequenzen zu niedrigeren Energien ist eine Folge dieses zusätzlichen Wärmeeintrags. Räumliche oder zeitliche Inhomogenitäten des externen Magnetfelds können ausgeschlossen werden, da die Verschiebung sowohl auf den $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$ - als auch auf den $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ -Übergängen beobachtet werden kann.²

Aufgrund dieser beiden Aspekte, der Temperaturabhängigkeit und dem nichtlinearen Zusammenhang zwischen äußerem Magnetfeld und Position der Resonanzfrequenz bei hohen transversalen Feldern, ist es im Experiment zwingend notwendig, die Position aller acht ODMR-Resonanzen zu messen, da nur aus dem Abstand zwischen dem $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$ - und dem $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ -Übergang die Magnetfeldkomponente entlang der entsprechenden NV-Achse zuverlässig bestimmt werden kann. Außerdem muss während der Messdauer eines ODMR-Spektrums die Temperatur am Beobachtungsort möglichst konstant gehalten werden, da die Messergebnisse sonst stark verfälscht werden könnten. Nach Änderungen der Laserintensität, der Mikrowellenleistung, der Stromstärke in den Magnetspulen und selbstverständlich der Umgebungstemperatur

²Auf dem ersten Übergang ist diese Verschiebung am wenigsten deutlich. Da dieser Übergang als erstes nach der Erhöhung der Mikrowellenleistung gemessen wurde, hat das System zu diesem Zeitpunkt noch nicht seine neue, erhöhte lokale Gleichgewichtstemperatur erreicht.

muss folglich eine ausreichende Wartezeit eingehalten werden, damit das System seine neue Gleichgewichtstemperatur erreichen kann. Im verwendeten Versuchsaufbau konnten typische Wartezeiten von einigen Stunden nach dem Einschalten aller Geräte und von wenigen Minuten nach der Veränderung einzelner Parameter beobachtet werden.

Beim Arbeiten im kryogenen Umfeld ($T = 0 - \approx 85$ K) ist das Problem weniger ausgeprägt, da in diesem Temperaturbereich der Wert für D nahezu konstant ist [104].

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

Eine notwendige Voraussetzung dafür, dass anhand der Lumineszenzintensität überhaupt zwischen den Zuständen des NV-Zentrums unterschieden werden kann, ist die Unterdrückung von direkten Übergängen zwischen den $|0\rangle$ - und $|\pm 1\rangle$ -Zuständen, solange kein externes Mikrowellenfeld der passenden Frequenz die Zustände durchmischt. Andernfalls könnte keine Resonanz im ODMR-Spektrum beobachtet werden.

Da der Energieunterschied im Nullfeld nur $h \times 2.87$ GHz = 11.4 μ eV beträgt, ist bereits bei Umgebungstemperaturen von $T = 1$ K ausreichend thermische Energie im System vorhanden, um alle drei möglichen Zustände gleichermaßen zu besetzen. In der Folge strebt ein Ensemble von NV-Zentren immer eine Gleichverteilung der Besetzungen an. Die Zeitskala, auf der sich diese Gleichverteilung einstellt, wird üblicherweise als Spin-Gitter- oder longitudinale Relaxationszeit T_1 genannt. Nur wenn diese Zeit groß ist im Vergleich zu der Zeitskala, auf der sich die Manipulation des NV-Zentrums durch Licht oder Mikrowellen abspielt, können Rückschlüsse auf den ursprünglichen Zustand mit ausreichender Sicherheit gezogen werden. Darüber hinaus bildet T_1 das absolute Limit für die Phasenkohärenzzeit des Quantensystems.

Neben externen MW-Feldern können Übergänge zwischen den Spinzuständen bei Raumtemperatur auch von Raman- oder Orbach-artigen [108] Zwei-Phonon-Prozessen angeregt werden. Da die Wahrscheinlichkeiten für diese Prozesse eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit besitzen, verlängert sich T_1 drastisch, wenn der Diamant in ein kryogenes Umfeld gebracht wird. In diesem Fall ist T_1 ultimativ durch den Austausch zwischen den Elektronenspins benachbarter NV-Zentren oder zwischen dem Elektronenspin der NV-Zentren und dem Kernspin benachbarter Störstellen wie Stickstoff oder Kohlenstoffisotope ^{13}C beschränkt. Deshalb kann in reinen Proben und bei Temperaturen von $T < 10$ K eine longitudinale Relaxationszeit von über einer Minute beobachtet werden [109].

Bei Raumtemperatur zeigen die von uns untersuchten Diamanten eine Relaxationszeit von $T_1 = 5.3$ ms, was dem typischen Literaturwert entspricht [109]. Zur Bestimmung von T_1 werden die beobachteten NV-Zentren durch eine optische Anregung zunächst in den definierten Zustand $|0\rangle$ gebracht. Anschließend wird die Zeit τ abgewartet, bevor die Intensität der Lumineszenz als Antwort auf einen erneuten optischen Anregungspuls gemessen wird. Die Abnahme der Intensität bei zunehmender Warte-

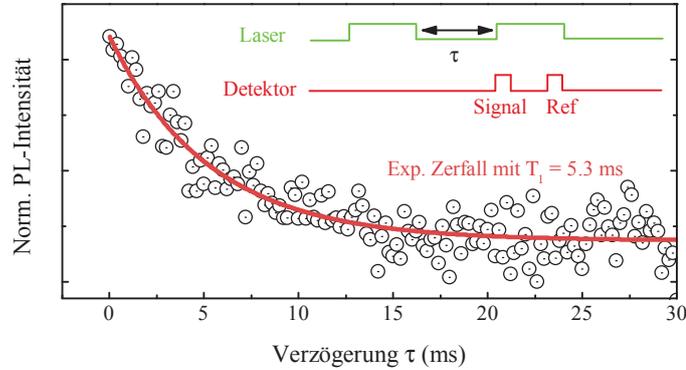


Bild 2.7: Experimentelle Bestimmung der longitudinalen Relaxationszeit T_1 . Das Signal wird sehr gut durch einen monoexponentiellen Zerfall mit $\tau_L = 5.3$ ms beschrieben (rot). Schematisch ist die verwendete Pulssequenz der Anregung und der Detektion angegeben

zeit entspricht der Relaxation des Systems, da zunehmend mehr NV-Zentren ihren Spinzustand von $|0\rangle$ zu $|\pm 1\rangle$ wechseln.

Im Experiment wird nur während eines Zeitfensters von etwa 500 ns die Lumineszenz gemessen, da mit längerer Beobachtungsdauer immer mehr NV-Zentren bereits wieder vom dunklen Zustand $|\pm 1\rangle$ in den hellen Zustand $|0\rangle$ optisch gepumpt werden. Ein zweites Messfenster am Ende des zweiten Laserpulses liefert einen Referenzwert für die Intensität, sodass langsame Intensitätsschwankungen aufgrund von Drift im Aufbau die Messung nicht stören.³

Die lange longitudinale Relaxationszeit T_1 eröffnet die Möglichkeit, die Quantennatur der NV-Zentren in einer Vielzahl von Experimenten zu nutzen. So lässt sich in Kombination mit einem externen Magnetfeld, welches die $|0\rangle \rightarrow |\pm 1\rangle$ -Übergänge einer NV-Orientierung spektral von den übrigen trennt, ein effektives Zwei-Niveau-System erzeugen, welches als Qubit genutzt werden kann. Oszillationen zwischen den beiden Zuständen eines Qubits, die von einem äußeren elektromagnetischen Wechselfeld angeregt werden, bezeichnet man als Rabi-Oszillationen.

Im Hamiltonoperator des Spins sei das Wechselfeld mit der Amplitude Ω und der Frequenz ω als zeitabhängige Störung $\hat{\Omega} \sin \omega t$ berücksichtigt:

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_0 + \hbar \hat{\Omega} \sin \omega t \quad (2.3)$$

³Der Appendix B in Ref. [110] gibt eine ausführliche Übersicht, wie die optimal den experimentellen Bedingungen angepasste Zeitdauer des Anregungspulses, des Signal- und Referenzmessfensters und deren Abstand gefunden werden kann.

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

Da die Eigenzustände des ungestörten Systems mit $|0\rangle$ und $|1\rangle$ bekannt sind, lässt sich die zeitabhängige Lösung $|\Psi(t)\rangle$ der Schrödinger Gleichung

$$i\hbar \frac{\delta}{\delta t} |\Psi(t)\rangle = \mathcal{H} |\Psi(t)\rangle \quad (2.4)$$

gemäß der zeitabhängigen Störungstheorie [111] als Linearkombinationen der bekannten Zustände schreiben, wobei für diese eine explizite Zeitabhängigkeit angenommen wird:

$$|\Psi(t)\rangle = c_0(t) \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right) |0\rangle + c_1(t) \exp\left(-\frac{iE_1 t}{\hbar}\right) |1\rangle \quad (2.5)$$

Die Betragsquadrate der Koeffizienten $c_0(t)$ und $c_1(t)$ entsprechen dann der Wahrscheinlichkeit, das System zum Zeitpunkt t im Zustand $|0\rangle$ oder $|1\rangle$ zu finden.

Mit der Konvention

$$\hat{\Omega}_{nk} = \langle \phi_n | \hat{\Omega} | \phi_k \rangle \quad (2.6)$$

liefert das Einsetzen der Linearkombination aus Gleichung 2.5 in die Schrödinger-Gleichung 2.4 und Multiplizieren mit $\langle 0|$:

$$i\hbar \frac{d}{dt} c_0(t) \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right) = E_0 c_0(t) \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right) + c_0(t) \exp\left(-\frac{iE_0 t}{\hbar}\right) \hat{\Omega}_{00} \sin \omega t \\ + c_1(t) \exp\left(-\frac{iE_1 t}{\hbar}\right) \hat{\Omega}_{01} \sin \omega t \quad (2.7)$$

Wendet man die zeitliche Ableitung des Terms auf der linken Seite an und klammert den Faktor $\exp(iE_0 t/\hbar)$ aus, ergibt sich mit

$$\omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle} = \frac{E_0 - E_1}{\hbar} \quad (2.8)$$

die folgende Differentialgleichung für den Koeffizienten $c_0(t)$:

$$i\hbar \frac{d}{dt} c_0(t) = \hat{\Omega}_{00} c_0(t) \sin \omega t + \hat{\Omega}_{01} c_1(t) \exp(i\omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle} t) \sin \omega t \quad (2.9)$$

Mit Hilfe der Eulerformel lässt sich der Sinus als Summe zweier Exponentialfunktionen beschreiben, weshalb Gleichung 2.9 auch geschrieben werden kann als:

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} c_0(t) &= \frac{1}{2i} [\hat{\Omega}_{00} c_0(t) (\exp(i\omega t) - \exp(-i\omega t))] \\
 &\quad + \frac{1}{2i} [\hat{\Omega}_{01} c_1(t) (\exp(i(\omega - \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle})t) - \exp(-i(\omega + \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle})t))]
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

Schwingt das externe Wechselfeld mit einer Frequenz ω , die nahe der Übergangsfrequenz $\omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$ liegt, lassen sich die Exponentialfunktionen in Gleichung 2.10 in schnell (ω und $\omega + \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$) und langsam ($\omega - \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$) oszillierende Beiträge einteilen. Bei der zeitlichen Integration mitteln sich die schnell oszillierenden Terme zu Null und sind daher vernachlässigbar. Diese Näherung ist allgemein als Säkularnäherung oder Rotating Wave Approximation bekannt.

Wendet man die Gleichungen 2.7 bis 2.10 auch auf den Koeffizienten $c_1(t)$ an, erhält man das folgende gekoppelte Gleichungssystem:

$$\frac{d}{dt} c_0(t) = -\frac{1}{2\hbar} \exp(i(\omega - \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle})t) \hat{\Omega}_{01} c_1(t) \tag{2.11}$$

$$\frac{d}{dt} c_1(t) = \frac{1}{2\hbar} \exp(-i(\omega - \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle})t) \hat{\Omega}_{10} c_0(t) \tag{2.12}$$

Das Gleichungssystem lässt sich einfach lösen. Im folgenden wird zunächst der Fall betrachtet, in dem die Frequenz des externen Feldes resonant zur Übergangsfrequenz ist, also $\omega \approx \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$.

Ein erneutes Ableiten von Gleichung 2.11 und Einsetzen des Ergebnisses in Gleichung 2.12 entkoppelt die Gleichungen und führt zu:

$$\frac{d^2}{dt^2} c_0(t) = -\frac{1}{4\hbar^2} |\hat{\Omega}_{01}|^2 c_0(t) \tag{2.13}$$

Das NV-Zentrum soll sich zum Zeitpunkt $t = 0$ im Zustand $|0\rangle$ befinden, weswegen die Anfangsbedingungen lauten:

$$c_0(0) = 1 \tag{2.14}$$

$$c_1(0) = 0 \tag{2.15}$$

Daraus folgt sofort:

$$\frac{d}{dt} c_0(0) = 0 \tag{2.16}$$

$$\frac{d}{dt} c_1(0) = \frac{\hat{\Omega}_{10}}{2\hbar} \tag{2.17}$$

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

Damit lautet die Lösung der vereinfachten Differentialgleichung 2.13

$$c_0(t) = \cos \frac{\hat{\Omega}_{10} t}{2\hbar}, \quad (2.18)$$

und die Wahrscheinlichkeit P , das NV-Zentrum im Zustand $|0\rangle$ vorzufinden, nachdem für einen Zeitraum t ein externes Wechselfeld mit der Resonanzfrequenz angelegt worden ist

$$P_{|0\rangle}(t) = \cos^2 \frac{\hat{\Omega}_{10} t}{2\hbar} \quad (2.19)$$

$$\propto \cos^2 \Omega_{Rabi} t. \quad (2.20)$$

Die Wahrscheinlichkeit wird also durch eine Schwingung zwischen den beiden Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$ beschrieben. Diese stellt die eingangs angesprochene Rabi-Oszillation dar.

Um diese im Experiment wie in Bild 2.8 sichtbar zu machen, muss neben der optischen Anregung auch das externe Mikrowellenfeld zeitlich gepulst angelegt werden. Der Messzyklus startet wie gehabt mit einem optischen Puls, der die NV-Zentren in den Zustand $|0\rangle$ bringt. Daran anschließend wird ein Mikrowellenpuls mit variabler zeitlicher Dauer t angelegt. Gegen Ende eines Messzyklus wird ein weiterer optischer Puls angelegt, mithilfe dessen der Zustand über die Lumineszenzintensität ausgelesen wird und der gleichzeitig zur Reinitialisierung der NV-Zentren verwendet wird. Ein zweites Messfenster liefert wieder einen Referenzwert für die Intensität, auf den das Messsignal im ersten Fenster normiert wird, um langsame Drifts während der Dauer des gesamten Experiments zu kompensieren. In Bild 2.8 (a) ist die Abfolge der verschiedenen Pulse schematisch angedeutet.

Die Oszillation zwischen den Zuständen äußert sich in einer Oszillation der Lumineszenzintensität, welche offensichtlich gedämpft ist. Die Zeitkonstante, mit der Schwingung abklingt, wird als Spin-Gitter-Relaxationszeit im rotierenden Bezugssystem $T_{1\rho}$ bezeichnet [112, 113] und ist deutlich kürzer als die longitudinale Relaxationszeit T_1 im Laborsystem. Der offensichtliche Grund dafür ist die anhaltende Manipulation des Systems während der Rabi-Oszillation, welche die Kohärenzzeit des Systems erheblich reduziert.

Die experimentellen Daten werden dementsprechend durch den Zusammenhang

$$I(t) = I_0 \cos(\Omega_{Rabi} t) \exp(-t/T_{1\rho}) \quad (2.21)$$

beschrieben.

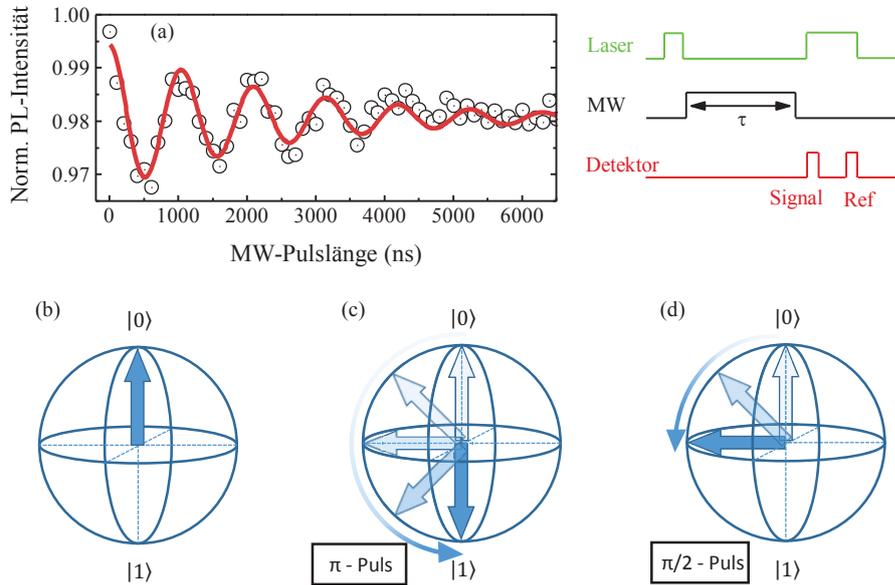


Bild 2.8: (a) Experimentelle Beobachtung der Rabi-Oszillation zwischen zwei Zuständen am NV-Ensemble. Schematisch ist die verwendete Pulssequenz der Laser- und MW-Anregung sowie der Detektion angegeben. In rot ist der Rabi-Zerfall gemäß Gleichung 2.21 angepasst. (b) - (d) Zustände auf der Blochkugel. Die Situation in Teilbild (b) entspricht dem Zeitpunkt $\tau = 0$ aus Teilbild (a), wenn alle Zentren des Ensembles in den Zustand $|0\rangle$ polarisiert sind. In den Bildern (c) und (d) ist die Situation nach Anlegen eines π - bzw. $\pi/2$ -Pulses gezeigt. Während der π -Puls das System in den $|1\rangle$ Zustand treibt, erzeugt der $\pi/2$ -Puls eine Superposition aus den Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Die Pfeile sollen die zeitliche Entwicklung des Vektors während dem Anlegen der Pulse widerspiegeln

Der zeitliche Abstand bis zum ersten Minimum der Lumineszenzintensität gibt bei gegebener MW-Leistung die benötigte Pulsdauer an, um zwischen den beiden Zuständen des Systems kontrolliert zu schalten. Den so in Dauer und Leistung definierten MW-Puls bezeichnet man i. A. als π -Puls. Die Bezeichnung rührt von der Betrachtungsweise der Zustände auf einer Blochkugel her. Auf der Blochkugel zeigt per Definition der Zustandsvektor $|0\rangle$ auf ihren Nordpol, der Zustand $|1\rangle$ auf den Südpol. Da der Zustandsvektor für den Übergang folglich um 180° gedreht werden muss, ergibt sich die Bezeichnung π -Puls.

Alle anderen Punkte auf der Oberfläche der Blochkugel entsprechen Superpositionen aus den beiden Zuständen. Bei einem $\pi/2$ -Puls wird der Vektor gerade so weit gedreht, dass der Zustandsvektor auf den Äquator zeigt, sodass der Zustand zu gleichen Anteilen aus $|0\rangle$ und $|1\rangle$ besteht. Die Beschreibung wird in den Bildern 2.8 (b) - (d) veranschaulicht.

Die Länge des π -Pulses entscheidet, wie schnell das Quantensystem geschaltet wer-

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

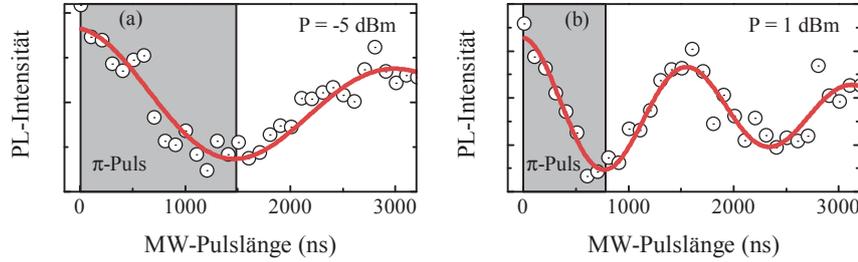


Bild 2.9: (a) Rabi Oszillation bei einer MW-Leistung von $P_{MW} = 5$ dBm. In rot ist der Rabi-Zerfall gemäß Gleichung 2.21 angepasst. In grau ist das Zeitintervall angegeben, welches in seiner Dauer einem π -Puls entspricht. (b) Rabi Oszillation bei einer MW-Leistung von $P_{MW} = -1$ dBm, sonst wie in Teilbild (a)

den kann. In verschiedenen Experimenten konnten dabei Gate-Zeiten von bis zu wenigen ns demonstriert werden [114]. Wie in den Bildern 2.8 (b) und (c) gezeigt, wird die Dauer maßgeblich durch die MW-Leistung bestimmt. Im Beispiel ist die Leistung in der für die Hochfrequenztechnik üblichen Einheit dBm angegeben. Die Umrechnung in die entsprechende SI-Einheit Watt W erfolgt über

$$P_{Watt} = 1W \cdot 10^{P_{dBm}/10} / 1000, \quad (2.22)$$

sodass sich die beiden Leistungen -5 dBm und 1 dBm zu 0.32 mW bzw. 1.3 mW ergeben.

Obwohl sich im Beispiel die Leistung um den Faktor 4 unterscheidet, halbiert sich die Länge des π -Pulses. Der Grund hierfür ist, dass die MW-Leistung proportional zum E- und B-Feld der Mikrowelle ist

$$P_{MW} \propto E \cdot B, \quad (2.23)$$

allerdings nur der B-Feldanteil der Mikrowelle gemäß Gleichung 2.1 an den Spin des Systems koppelt. Damit ergibt sich für die Oszillationsfrequenz Ω_{Rabi} :

$$\Omega_{Rabi} \propto B_{MW} \propto \sqrt{P_{MW}} \quad (2.24)$$

In der bisherigen Betrachtung wurde angenommen, dass die Frequenz der Mikrowelle ω_{MW} resonant mit der Übergangsfrequenz $\omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$ abgestimmt ist. Für den Fall, dass die Bedingung

$$\omega_{MW} = \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle} \quad (2.25)$$

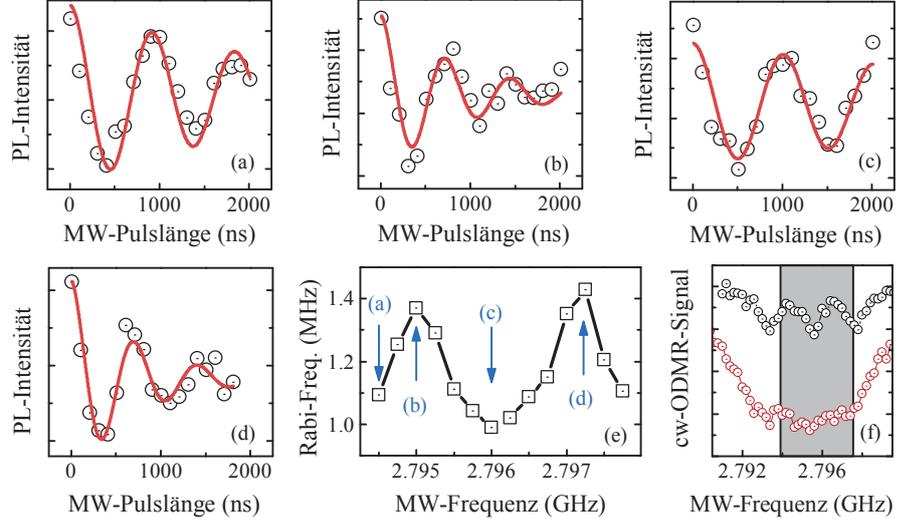


Bild 2.10: (a) - (d) Rabi-Oszillationen bei gleichem externen Magnetfeld und gleicher Leistung auf unterschiedlichen MW-Frequenzen ($\omega_{MW} = 2.7945 \text{ GHz} - 2.79775 \text{ GHz}$, Schrittweite 250 kHz). (e) Widerspiegelung der Hyperfeinstruktur im Spektrum der Rabi-Frequenzen Ω_{Rabi} . Die spektralen Position der Bilder (a) - (d) sind durch blaue Pfeile markiert. (f) cw-ODMR-Signal für unterschiedliche MW-Leistungen. Schwarz: niedrige MW-Leistung zur Verdeutlichung der Feinstruktur. Rot: hohe MW-Leistung wie in den gepulsten Messungen (a) - (d)

nicht erfüllt ist, ändert sich Gleichung 2.20 zur Beschreibung der Besetzungswahrscheinlichkeiten. Neben einem zusätzlich auftretenden Amplitudenkoeffizienten K modifiziert die Verstimmung auch die Oszillationsfrequenz Ω_{Rabi}

$$P_{|0\rangle} = K(\omega_{MW}) \sin^2 \sqrt{\frac{\Delta^2}{4} + \frac{\Omega_{10}^2}{4\hbar^2} t} \quad (2.26)$$

wobei die Verstimmung der Mikrowelle mit $\Delta = \omega_{MW} - \omega_{|0\rangle \rightarrow |1\rangle}$ gekennzeichnet ist.

Der Effekt ist in Bild 2.10 am Beispiel der Feinstruktur eines einzelnen $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ -Übergangs dargestellt. In den Teilbildern (a) bis (d) ist im externen Magnetfeld eine MW-Leistung von 8 dBm angelegt, bei der Rabi-Oszillation für ansteigende Mikrowellenfrequenzen von 2.7945 GHz bis 2.79775 GHz aufgenommen wurden. Man erkennt deutlich die unterschiedlichen Oszillationsfrequenzen Ω_{Rabi} .

In der Auftragung der Rabi-Frequenzen gegen die MW-Frequenz in Bild 2.10 (e) erkennt man eine deutliche Struktur von zwei lokalen Maxima, die um 2 MHz bis 2.25 MHz verschoben sind. Dies entspricht exakt dem Abstand zwischen zwei Kernspinorientierungen des ^{14}N -Isotops.

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

Der direkte Vergleich mit dem cw-ODMR-Spektrum ist schwierig, da der unterschiedliche Wärmeeintrag durch die MW bei gepulster und cw-Anregung die Absolutwerte der Übergangsfrequenzen verschiebt.

Um eine grobe Abschätzung vornehmen zu können, soll daher angenommen werden, dass das System eine Zeit τ zum Erreichen der neuen Gleichgewichtstemperatur braucht, die länger als die Pulsdauer im Experiment ist. Dann kann eine durchschnittliche MW-Leistung berechnet werden, die bei einer Pulsdauer von $1\ \mu\text{s}$ auf das System wirkt.

Ein Messzyklus dauert etwa $50\ \mu\text{s}$, sodass als Vergleichswert ein cw-Spektrum bei einer Leistung von

$$P_{cw} = \frac{8\ \text{dBm}}{50} = -10\ \text{dBm} \quad (2.27)$$

gewählt wird. Teilbild (f) zeigt dieses cw-ODMR-Spektrum. Ein Vergleich der Strukturen in den Teilbildern (e) und (f) deutet darauf hin, dass direkt auf den Resonanzen der ^{14}N -Kernspinniveaus die niedrigsten Rabi-Frequenzen Ω_{Rabi} zu finden sind. Dies ist in Übereinstimmung mit Gleichung 2.26.

Die Änderung der Rabi-Frequenz Ω_{Rabi} stellt eine weitere Möglichkeit der Magnetometrie dar. In einer konservativen Abschätzung nach Bild 2.10 (e) soll der Verlauf zwischen den Datenpunkten bei $\omega_{MW} = 2.795\ \text{GHz}$ und $\omega_{MW} = 2.796\ \text{GHz}$ als linear angesehen werden.

Aus den Rabi-Frequenzen bei diesen Datenpunkten ergibt sich dann eine Steigung von

$$\frac{d\Omega_{Rabi}}{d\omega_{MW}} \approx \frac{400\ \text{MHz}}{1\ \text{MHz}}. \quad (2.28)$$

Ein Unterschied von $40\ \text{MHz}$ in Ω_{Rabi} kann ohne weiteres festgestellt werden. Dieser entspricht dann einem Verschieben der Übergangsfrequenz von nur $100\ \text{kHz}$. Die gleiche Verschiebung wird von einer Änderung des externen Magnetfelds um $3.6\ \mu\text{T}$ verursacht, die somit problemlos zu detektieren ist.

Der Nachteil der Bestimmung des Magnetfelds nach dieser Methode ist die Dauer der Messung, da für eine Bestimmung von Ω_{Rabi} eine hinreichende Anzahl an Datenpunkten vorhanden sein muss.

Schneller lässt sich die Amplitude einer Komponente des externen Magnetfelds durch erweiterte Pulssequenzen bestimmen. Mit diesen Methoden können auch die höchsten Sensitivitäten bei der Magnetometrie mit NV-Zentren erreicht werden [28, 115]. Diese sind für den Fall von statischen Feldern Sequenzen, die auf der Ramsey-Interferometrie [116] basieren und Spin-Echo-Messungen für geeignete Wechselfelder [117]. Der Vollständigkeit wegen sind diese im Folgenden kurz vorgestellt.

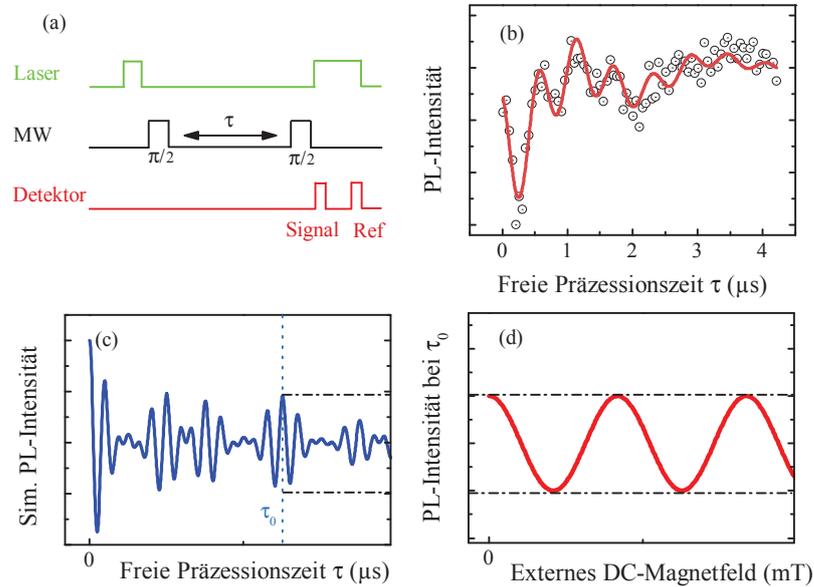


Bild 2.11: (a) Schematische Darstellung der verwendeten Ramsey-Pulssequenz. (b) Experimentelle Daten unter Verwendung der Pulssequenz aus (a). (c) Simuliertes Ramsey-Signal von NV-Zentren. (d) Verlauf der Lumineszenzintensität unter Variation des externen Magnetfelds

Die Ramsey-Sequenz startet nach der optischen Initialisierung mit einem $\pi/2$ -Puls, der eine Superposition aus den beiden Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$ schafft. Nach einer Zeit τ , in der der Spin um ein externes Magnetfeld präzedieren kann, wird ein zweiter $\pi/2$ -Puls auf das System angelegt.

Würde kein äußeres Magnetfeld existieren, kombinieren sich die beiden $\pi/2$ -Pulse zu einem π -Puls, und im idealisierten Fall wird das ganze System in den $|1\rangle$ -Zustand projiziert. Aufgrund von Spin-Spin-Wechselwirkungen mit anderen Spin-Reservoirs (z. B. ^{13}C -Spinbad, Elektronen von weiteren Stickstoffdonatoren) dephasiert das System jedoch auf einer Zeitskala, die üblicherweise als freie Induktionszerfallszeit T_2^* bezeichnet wird.

Im externen Magnetfeld beginnt der Spin nach dem ersten $\pi/2$ -Puls zu präzedieren. In der Zeit τ sammelt er eine Phase $\phi(B, \tau) \propto B\tau$ auf. Diese Phase übersetzt sich durch den zweiten $\pi/2$ -Puls in einen mit B und τ variierende Besetzungswahrscheinlichkeit von $|0\rangle$ und $|1\rangle$, und damit in eine variierende Lumineszenzintensität.

Neben dem Abklingen durch die Dephasierung des Ensembles wird im Magnetfeld außerdem eine charakteristische Überlagerung von mehreren Oszillationen beobachtet. Diese wird von den drei Übergängen der unterschiedlichen Kernspinorientierungen des Stickstoffs verursacht, die bei hinreichend starker MW-Leistung gleichzeitig angeregt werden (vgl. Bild 2.6). Je nach Orientierung des Kernspins leistet dieser

2.4 Dynamisches Verhalten des Elektronenspins

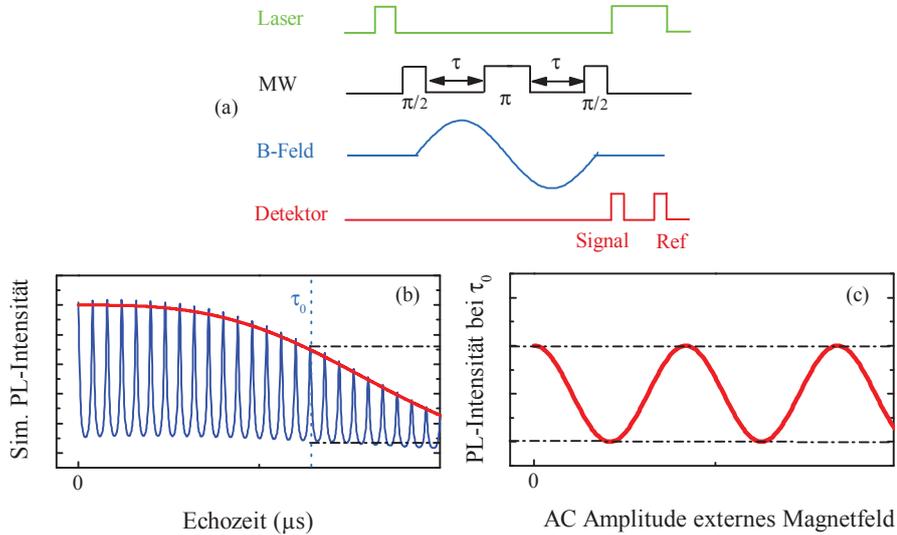


Bild 2.12: (a) Schematische Darstellung der Spin-Echo-Pulssequenz. (b) Simuliertes Echo-Signal der NV-Zentren im äußeren Magnetfeld der Frequenz $f = 2\tau$. (c) Verlauf der Lumineszenzintensität zum Zeitpunkt τ_0 unter Variation des externen Magnetfelds

einen unterschiedlichen Beitrag zum effektiven Magnetfeld, um welches der Elektronenspin präzediert. Daher sind im Beispiel in Bild 2.11 (b) drei Beiträge zur korrekten Beschreibung notwendig [118].

Bild 2.11 (c) zeigt eine idealisierte Simulation zur besseren Verdeutlichung. Eine Änderung des externen Magnetfelds führt nun zu einer veränderten Präzessionsgeschwindigkeit des Spinsystems und dadurch veränderten, aufgesammelten Phase $\phi(B, \tau)$. Betrachtet man daher die Lumineszenzintensität zu einem fixen Zeitpunkt τ_0 , kann aus der Änderung der Lumineszenzintensität zu diesem Zeitpunkt auf die Änderung der externen Magnetfeldstärke geschlossen werden.

Im Vergleich zu der vorgeschlagenen Methode, eine Änderung des Magnetfelds anhand der Rabi-Oszillationsfrequenz Ω_{Rabi} zu messen, reicht bei dieser Methode ein einziger Datenpunkt aus, um die Änderung des Magnetfelds zu bestimmen. Dies gilt jedoch nur mit der Einschränkung, dass aufgrund des oszillierenden Verhaltens in Bild 2.11 (d) Magnetfeldwerte mit einer bestimmten Periodizität zu identischen PL-Signalen zum Zeitpunkt τ_0 führen.

Weiterhin ist daher auch eine Fourieranalyse des kompletten Ramseysignals möglich. Eine Verschiebung der beobachteten Frequenzen kann dann in eine Änderung des externen Magnetfelds übersetzt werden [119].

Im Fall von magnetischen Wechselfeldern können noch niedrigere Feldamplituden gemessen werden. Ist die Frequenz des externen Wechselfelds bekannt, stellt die Spin-

Echo-Messung eine Möglichkeit zur Bestimmung der Amplitude bereit. Bild 2.12 (a) zeigt ein Schema der Pulssequenz.

Liegt kein äußeres Feld an, verändert sich der Zustand während der freien Präzessionszeiten τ nicht. Die MW-Pulse agieren daher wie ein konstanter 2π -Puls und verändern den Zustand des Systems also nicht.

In einem statischen, äußeren Feld sind die während der beiden freien Präzessionsintervalle aufgesammelten Phase gleich groß, haben allerdings ein unterschiedliches Vorzeichen, sodass sie sich gegenseitig aufheben.

Die Idee ist daher, die Dauer 2τ der gesamten Sequenz auf die Frequenz des externen Wechselfelds abzustimmen. Dann ist das Vorzeichen der während der freien Präzession aufgesammelten Phase $\phi(B, \tau)$ immer das gleiche, und die Phasen addieren sich.

Immer wenn die gesamte Phase einem Wert von $\phi(B, \tau) = 2\pi n$ entspricht, projiziert der letzte $\pi/2$ -Puls das System wieder in den Zustand $|0\rangle$ und das Lumineszenzsignal erreicht ein Maximum.

Auch bei diesem Sequenztyp führt eine Änderung des externen Magnetfelds zu einer Änderung der Präzessionsgeschwindigkeit und der Phase $\phi(B, \tau)$ zu einem bestimmten Zeitpunkt τ_0 , die über die Lumineszenzintensität detektiert werden kann.

Je kleiner die Amplitude des Wechselfelds ist, umso größer wird τ , um das erste Spin-Echo zu erhalten. Da das Spin-Echo-Signal nicht mit T_2^* zerfällt, sondern mit der üblicherweise als transversalen Relaxationszeit bekannten Zeit T_2 [118], sind so extrem kleine Magnetfelder messbar.

Dieses Prinzip kann noch durch die Wahl von geeigneten Pulssequenzen verbessert werden, wenn z.B. wie bei den Car-Purcell-Meiboom-Gill-Sequenzen [120,121] mehr als zwei freie Präzessionsintervalle zur Phasenakkumulation genutzt werden [122].

Kapitel 3

Einfluss der Anregungspolarisation auf das Defekt-Ensemble

Das vorangegangene Kapitel zeigt wie aus den Resonanzfrequenzen im ODMR-Spektrum der Betrag der Magnetfeldprojektionen entlang der Richtungen der verschiedenen NV-Achsen gemessen werden kann. Es ergeben sich allerdings große Probleme in der Interpretation eines ODMR-Spektrums, wenn nicht klar ist, welche Resonanz zu welchem Übergang der vier möglichen NV-Orientierung gehört. In diesem Fall können weder der Betrag noch das Vorzeichen der Richtungskomponenten des Magnetfeldvektors eindeutig bestimmt werden. Im folgenden Kapitel wird zunächst demonstriert, wie mittels der Polarisation des Anregungslasers bestimmte NV-Orientierungen selektiv angeregt werden können. Der zweite Teil des Kapitels zeigt wie mithilfe der Polarisation der Mikrowellen eine Zuordnung der beobachteten Resonanzen zu den $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ oder $|0\rangle \rightarrow |+1\rangle$ Übergängen möglich wird.

3.1 Einfluss der Laserpolarisation

Die optische Anregung der NV-Zentren ist eine Folge der Wechselwirkung von Licht und Materie. Die Wirkung eines elektromagnetischen Feldes auf ein ungestörtes Quantensystem kann in der zeitabhängigen Störungstheorie behandelt werden [123]. Das daraus folgende Ergebnis für die Übergangswahrscheinlichkeit $W_{i,f}$ zwischen zwei Zuständen $|i\rangle$ und $|f\rangle$ wird häufig als Fermis Goldene Regel bezeichnet und lautet:

$$W_{i,f} = \frac{2\pi}{\hbar} |V_{i,f}|^2 D(E_f) \quad (3.1)$$

mit dem Übergangsmatrixelement $V_{i,f}$ und der Zustandsdichte $D(E_f)$.

Betrachtet man Fermis Goldene Regel in der elektrischen Dipolnäherung, in der die Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung deutlich größer als die Ausdehnung des Quantensystems ist, findet man, dass die Absorptionswahrscheinlichkeit proportional zu

3.1 Einfluss der Laserpolarisation

$$W_{i,f} \propto |\mathbf{D}_{i,f} \cdot \boldsymbol{\epsilon}|^2 \quad (3.2)$$

ist, wobei \mathbf{D} das elektrische Dipolmoment ist und $\boldsymbol{\epsilon}$ der Vektor des elektrischen Feldes der Anregung. Da die Dipolmomente der Elektronenorbitale der NV-Zentren für den Übergang zwischen dem Grundzustand 3A_2 und dem angeregten Zustand 3E senkrecht zur NV-Achse orientiert sind [124–126] ergeben sich daraus sofort voneinander abweichende Absorptionswahrscheinlichkeiten für unterschiedliche NV-Orientierungen bei einer linearen Polarisation des Anregungslasers.

Man betrachte hierzu den folgenden Fall: Ein Laser soll senkrecht auf die (100)-Oberfläche eines Diamanten einfallen, d.h. der \mathbf{k} -Vektor des Lasers steht senkrecht auf der Oberfläche (siehe Bild 3.1). Das Licht des Lasers soll außerdem linear polarisiert sein und die Polarisation einen Winkel θ mit der [010]-Raumrichtung einschließen. In diesem Fall gilt für den Polarisationsvektor $\boldsymbol{\epsilon}$:

$$\mathbf{k} = (k, 0, 0) \Rightarrow \boldsymbol{\epsilon} = (0, E \cos \theta, E \sin \theta) \quad (3.3)$$

Die elektrischen Dipolmomente für NV-Zentren entlang [111] sind senkrecht zu dieser Achse und zeigen entlang der Richtungen $[\bar{2}11]$ und $[01\bar{1}]$. Damit folgt für die Matrixelemente die folgende Abhängigkeit vom Winkel der Anregungspolarisation θ :

$$W_{A \rightarrow E} \propto \left| \begin{bmatrix} 0 \\ E \sin \theta \\ E \cos \theta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} 0 \\ 1/\sqrt{2} \\ -1/\sqrt{2} \end{bmatrix} \right|^2 = \frac{E^2}{2} (\sin \theta - \cos \theta)^2 = \frac{E^2}{4} \cos^2 \left(\theta + \frac{\pi}{4} \right) \quad (3.4)$$

$$W_{A \rightarrow E} \propto \left| \begin{bmatrix} 0 \\ E \sin \theta \\ E \cos \theta \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} -2/\sqrt{6} \\ 1/\sqrt{6} \\ 1/\sqrt{6} \end{bmatrix} \right|^2 = \frac{E^2}{6} (\sin \theta + \cos \theta)^2 = \frac{E^2}{12} \sin^2 \left(\theta + \frac{\pi}{4} \right) \quad (3.5)$$

Eine Simulation des erwarteten ODMR-Kontrasts in Abhängigkeit der Mikrowellenfrequenz und dem Winkel der Anregungspolarisation für ein externes Magnetfeld, welches die Entartung der verschiedenen Orientierungen aufhebt, wird in Bild 3.1 (b) gezeigt. Die experimentelle Überprüfung in Bild 3.1 (c) bestätigt das erwartete Verhalten. Die unterschiedlichen Intensitäten zwischen den einzelnen Signalbeiträgen können sowohl von der wachstumsbedingten unterschiedlich starken Konzentration von NV-Zentren für verschiedene Orientierungen [122, 127] als auch von der linearen Polarisation des MW-Feldes herrühren (siehe Kapitel 3.2) und wurde entsprechend in der Simulation mit einem angepassten Vorfaktor berücksichtigt.

Weiterhin fällt auf, dass in den experimentellen Werten eine leichte Dehnung der schwachen Signalbeiträge und eine leichte Stauchung der starken Signalbeiträge zu

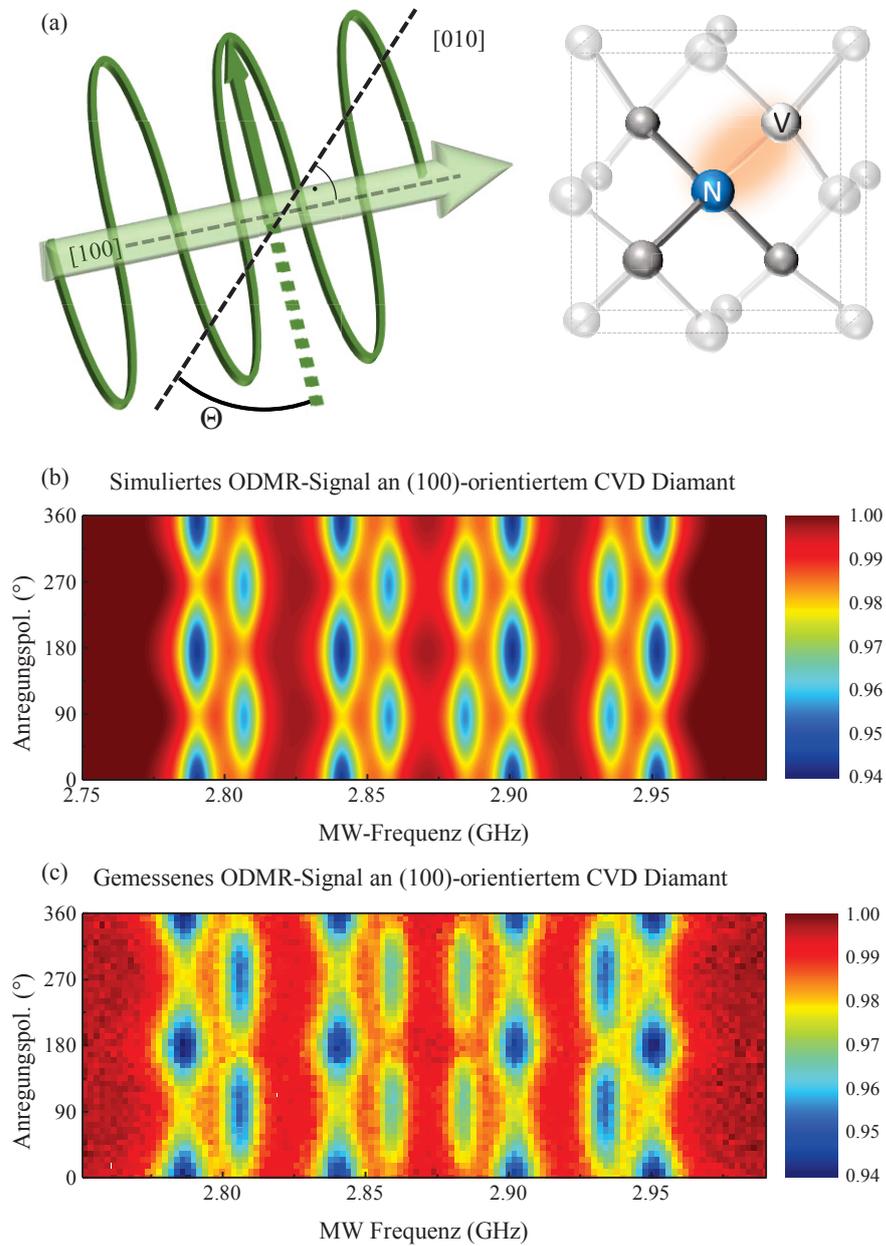


Bild 3.1: (a) Schematische Darstellung des Lasereinfalls auf die (100)-Oberfläche des Diamanten. Im Diamantgitter sind die Verbindungen zu den nächsten Nachbarn des Stickstoffatoms angedeutet, die gleichbedeutend mit den zusätzlich möglichen NV-Orientierungen sind. (b) Simulierter ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation. (c) Gemessener ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation

3.1 Einfluss der Laserpolarisation

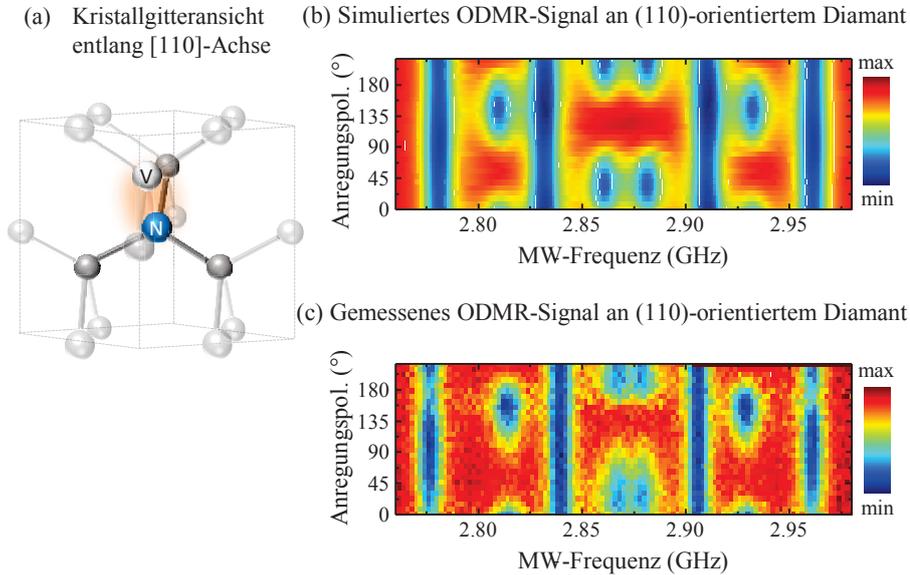


Bild 3.2: (a) Schematische Ansicht des Diamantkristalls entlang der $[110]$ -Richtung. Man erkennt, wie zwei NV-Orientierungen in der Beobachtungsebene liegen. Die zwei verbleibenden NV-Orientierungen zeigen aus der Ebene heraus bzw. in die Ebene hinein, besitzen dabei aber eine gemeinsame Projektion in die Beobachtungsebene. Daher sind die ODMR-Signale dieser Orientierungen bei den gleichen Winkeln der Laserpolarisation zu beobachten. (b) Simulierter ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation. (c) Gemessener ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation

beobachten sind. Der Grund hierfür liegt in dem verwendeten Strahlteiler in der Anregung.

Im Experiment wird ein konfokales Messschema angewendet, bei dem die Anregung dieselbe fokussierende Optik wie die Detektion passiert (vgl. Appendix A.1). Deshalb muss an einer Stelle des Strahlengangs hinter dem Objektiv ein Strahlteiler den Anregungslaser auf die optische Achse der Detektion umlenken. Bei der Reflexion von ebenen elektromagnetischen Wellen an ebenen Grenzflächen gelten unterschiedliche Reflexionskoeffizienten für horizontal und vertikal linear polarisierte Wellen, sobald der Einfallswinkel θ größer als 0° ist. Die beobachtete Verzerrung in Bild 3.1 (c) ist eine Folge davon, da der Winkel der Polarisation hinter dem Strahlteiler nicht mehr exakt gleich dem Winkel vor dem Strahlteiler ist.

Die Anregung von NV-Zentren einer bestimmten Orientierung kann also durch eine geeignete Wahl der Anregungspolarisation um einen Faktor 3 unterdrückt werden. Auf diese Weise können selektiv bestimmte NV-Zentren angeregt werden. Daraus ergibt sich die Möglichkeit, Resonanzen im ODMR-Spektrum bestimmten NV-Orientierungen zuzuordnen, und damit direkt die Magnetfeldkomponente entlang ei-

ner bestimmten Raumrichtung zu messen.

Im Fall von Bild 3.1 ist dies allerdings nur mit der Einschränkung möglich, dass immer noch zwei mögliche Orientierungen der NV-Zentren für jede Resonanz in Frage kommen.

Der Grund dafür ist, dass für jeweils zwei Orientierungen die Projektionen ihrer Dipolmomente in die Beobachtungsebene bis auf das Vorzeichen gleich sind. Gemäß Gleichung 3.2 werden diese Orientierungen immer gleich stark angeregt. Daher ist eine eindeutige Zuordnung alleine durch Variation des Winkels der linearen Polarisation des Anregungslasers noch nicht möglich.

Wie sich aus den Daten bereits ableiten lässt, kann die selektive Erzeugung von NV-Zentren bestimmter Orientierung ein Ausweg sein, dieses Problem zu umgehen. Problematisch dabei wäre allerdings der Verlust der Information über die Magnetfeldprojektion entlang der nicht erzeugten NV-Orientierungen.

Eine andere Lösung des Problems der Mehrdeutigkeit der Resonanzen ist die Verwendung von Diamanten, die über anders orientierte Oberflächen verfügen.

Im Beispiel eines Diamanten mit einer (110)-Ebene als Oberfläche lassen sich bereits zwei NV-Orientierungen eindeutig zuordnen. Der Grund dafür ist, dass die Achsen von zwei der vier möglichen Orientierungen exakt parallel zur Beobachtungsebene liegen. Daher kann die Polarisation des einfallenden Lasers ebenfalls exakt parallel zur NV-Achse eingestellt werden. Die jeweiligen Dipolmomente liegen senkrecht zu den NV-Achsen und damit auch zur Polarisation des Lasers, weswegen eine Anregung von NV-Zentren entlang dieser Kristallachsen gemäß Gleichung 3.2 vollständig unterdrückt werden kann (siehe Bild 3.2).

Da die beiden innerhalb der Beobachtungsebene liegenden NV-Achsen einen Winkel von $\alpha \approx 109^\circ$ einschließen, können NV-Zentren dieser Orientierungen bei unterschiedlichen Winkelstellungen der Anregungspolarisation und damit selektiv angeregt werden. Die beiden verbleibenden Orientierungen besitzen jeweils einen Richtungskomponente, die aus der Ebene herauszeigt. Daher zeigen diese Orientierungen ein ODMR-Signal bei allen Winkeleinstellungen. Folglich sind diese klar von den innerhalb der Beobachtungsebene liegenden NV-Zentren zu unterscheiden. Eine Unterscheidung zwischen den Beiträgen der beiden aus der Ebene herauszeigenden Orientierungen ist allerdings nicht möglich.

Dies ändert sich im Fall eines Diamanten, der über eine (111)-Oberfläche verfügt (Bild 3.3). In dieser Situation steht nur eine der vier Orientierungen senkrecht zur Beobachtungsebene und ist somit bei allen Winkeleinstellungen der Anregungspolarisation klar im ODMR-Spektrum erkennbar.

Neben dieser polarisationsunabhängigen Komponente sind drei weitere Resonanzen in den Bildern 3.3 (b) und (c) erkennbar. Für jede dieser Resonanzen lässt sich ein Polarisationswinkel θ bestimmen, bei dem die anderen zwei Resonanzen stark unterdrückt sind. Übereinstimmend mit den Projektionen der verbleibenden NV-Zentren in die Beobachtungsebene sind die Winkel θ für die verschiedenen Resonanzen um

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

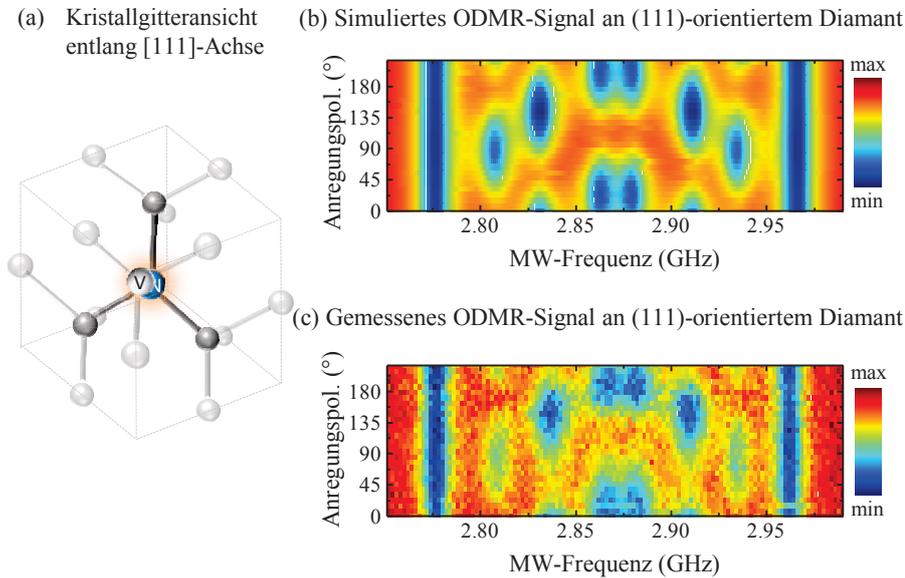


Bild 3.3: (a) Schematische Ansicht des Diamantkristalls entlang der [111]-Richtung. Drei NV-Orientierungen besitzen in 120° -Schritten angeordnete Projektionen in der Beobachtungsebene, sodass ihre ODMR-Signale entsprechend bei unterschiedlichen Winkeln der Laserpolarisation im Abstand von $\pi/3$ zu beobachten sind. Eine NV-Orientierung steht senkrecht zur Beobachtungsebene und ist daher bei allen Winkeln der Laserpolarisation gleichermaßen zu beobachten. (b) Simuliertes ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation. (c) Gemessener ODMR-Kontrast in Abhängigkeit der Anregungspolarisation

jeweils 60° verschoben.

Dies zeigt, dass sich bei der Magnetometrie mit Diamanten, die eine (111)-orientierte Oberfläche besitzen, alle vier unterschiedlichen NV-Orientierungen eindeutig anhand ihrer Antwort auf eine linear polarisierte Anregung identifizieren lassen. Damit ist es prinzipiell möglich, den Betrag sämtlicher Komponenten eines externen Magnetfelds eindeutig zu bestimmen.

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

Die Untersuchung einer ferromagnetischen Mikrostruktur soll das Prinzip der Magnetometrie mit einem Ensemble von NV-Zentren in (111)-orientiertem Diamant demonstrieren. Als Teststruktur dient eine sechseckige Kobaltstruktur mit einer Dicke von 50 nm, die direkt auf die (111)-Oberfläche des Diamanten aufgetragen wird (siehe Bild 3.4).

Die identische Oberfläche des Diamanten wurde vorher mit Stickstoffionen be-

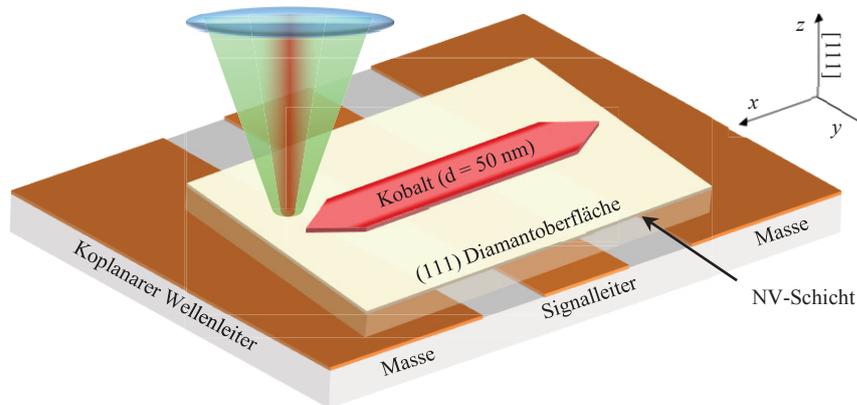


Bild 3.4: Schematische Darstellung der Messanordnung. Der Signalleiter des Wellenleiters hat eine Breite von etwa $400\mu\text{m}$ und einen Abstand von jeweils etwa $100\mu\text{m}$ zu den beiden äußeren Masseleitern. An der (111)-orientierten Oberseite besitzt der Diamant eine etwa 10nm dicke Schicht mit einer extrem erhöhten Dichte von NV-Zentren (etwa $800\mu\text{m}^{-2}$). Die Kobaltstruktur kann gedanklich in ein Rechteck mit den Abmessungen $18\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$ und zwei gleichseitige Dreiecke mit einer Seitenlänge von $3\mu\text{m}$ zerlegt werden. Das Beobachtungsvolumen hat einen Durchmesser von etwa 750nm . Der gesamte Block aus Wellenleiter und Diamant kann relativ zur Anregung in x - und y -Richtung verschoben werden

strahlt und anschließend so behandelt, dass sich direkt an der Oberfläche eine etwa 10nm dicke Schicht ausbildet, in der die Konzentration von NV-Zentren entscheidend erhöht ist (vgl. Kapitel 5). Dadurch ist sichergestellt, dass das PL-Signal nahezu vollständig aus dieser obersten Schicht herrührt. Da die Streufelder von magnetischen Strukturen wie den an dieser Stelle untersuchten Proben innerhalb der Beobachtungsebene parallel zur Ebene verlaufen, kann daher der besseren Veranschaulichung wegen im weiteren Verlauf eine mögliche z -Komponente des Feldes komplett vernachlässigt werden.

Ferromagnetische Dünnschichtsysteme wie diese sind unter dem Aspekt der Informationsspeicherung und -verarbeitung sowohl in der akademischen als auch in der industriellen Forschung von besonderem Interesse [128–130]. Im Folgenden soll jedoch allein die Kombination aus der hohen Remanenz des Elements Kobalt und den kleinen Abmessungen der Struktur zur Illustration der Magnetfeldmessung mit den NV-Zentren genutzt werden. Da der Fokus dieses Kapitels somit auf der Art und Weise der Magnetfeldmessung liegt und nicht auf dem untersuchten Objekt, soll an dieser Stelle nicht weiter auf die Systeme selbst eingegangen werden.

Eine Messung der Abhängigkeit des ODMR-Spektrums der Diamantprobe von der Polarisation des Anregungslasers im externen Magnetfeld verrät die Orientierung der unterschiedlichen NV-Achsen relativ zum Laborsystem. Hierzu wird nacheinander ein Magnetfeld entlang zweier orthogonaler Achsen (im weiteren als x - und y -Richtung

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

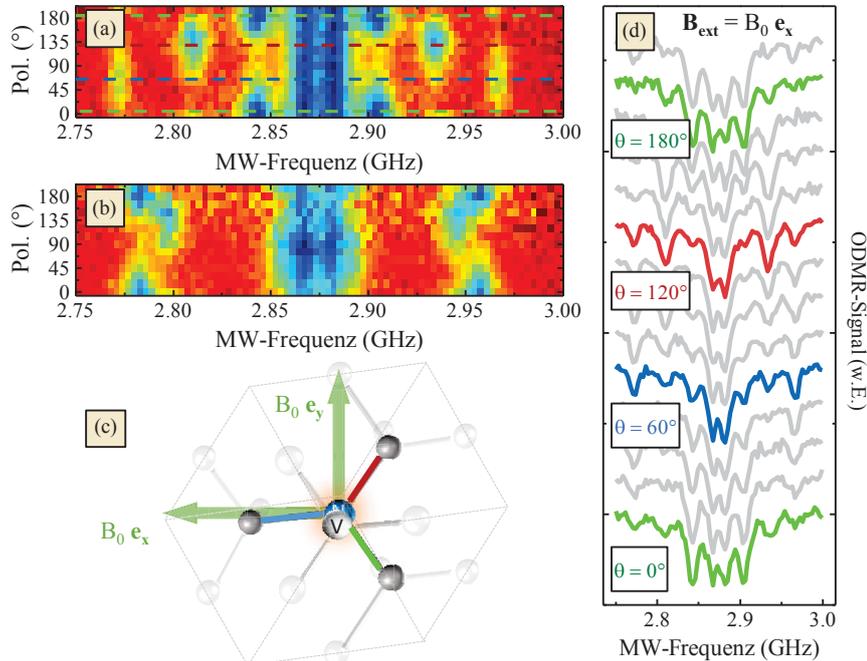


Bild 3.5: (a) ODMR-Spektren in Abhängigkeit der Laserpolarisation im externen Feld entlang der x -Richtung. (b) ODMR-Spektren in Abhängigkeit der Laserpolarisation im externen Feld entlang der y -Richtung. (c) Rekonstruierte Orientierung des Kristallgitters zu der x - und y - Achse des Laborsystems. (d) Die Übersicht über die einzelnen ODMR-Spektren verdeutlicht, wie bei drei ausgezeichneten Winkeleinstellungen die Beiträge der verschiedenen NV-Orientierungen selektiv angeregt werden können

bezeichnet) angelegt, die beide parallel zur Probenoberfläche sind. Aus der unterschiedlichen Antwort der verschieden orientierten NV-Achsen kann auf deren Lage im Laborsystem zurück geschlossen werden. Die Übersicht über die beiden Messungen sowie die daraus folgende Rekonstruktion der Orientierung der NV-Achsen zu den externen Feldern geben die Bilder 3.5 (a) - (c) wieder.

Die Übersicht über die ODMR-Spektren bei den einzelnen Winkeleinstellungen der Laserpolarisation in Bild 3.5 (d) zeigt, wie die Beiträge der zwei nicht adressierten NV-Orientierungen innerhalb der Beobachtungsebene nahezu vollständig unterdrückt werden, sodass das Spektrum nur noch aus den Beiträgen der selektiv angeregten Orientierung sowie der aus der Ebene heraus zeigenden Orientierung besteht. Unter der Annahme, dass die z -Komponente des Feldes vernachlässigbar ist und damit die energetische Position des Beitrags der aus der Ebene heraus zeigenden Orientierung immer ihren Nullfeldwert beibehält, kann eindeutig die Komponente des Feldes entlang der beobachteten NV-Orientierung bestimmt werden.

Ein praktischer Nachteil ist jedoch in Bild 3.5 sofort offensichtlich. Der Beitrag der

NV-Orientierung, welche bei ca. 60° angeregt wird, ist im Vergleich deutlich schwächer ausgeprägt als die anderen. Da die Beiträge der beiden anderen NV-Zentren im (111)-orientierten Diamant nicht vollständig unterdrückt werden können (siehe Kapitel 3.1), ist eine Identifikation des richtigen Beitrags nur sehr schwer möglich, wenn man nur das ODMR-Spektrum bei 60° isoliert betrachtet. Die Konsequenz daraus ist, dass man für eine eindeutige Zuordnung mehrere Zwischenschritte der Polarisations-einstellung benötigt, um die Beiträge trennen zu können.

Bei kleinen externen Feldern bleibt jedoch auch in diesem Fall noch die Schwierigkeit bestehen, den Beitrag der adressierten Orientierung von dem Beitrag zu trennen, der von der aus der Ebene heraus zeigenden Orientierung verursacht wird. Diese überlappen dann stark, was eine robuste Auswertung der Spektren erheblich verkompliziert.

Es bietet sich daher die Kontrolle der Mikrowellenpolarisation an, um in diesem Punkt Abhilfe zu schaffen. Im hier beschriebenen Experiment dient ein koplanarer Wellenleiter dazu, die Mikrowelle an den Diamanten heranzuführen. Die magnetischen Feldlinien einer koplanaren Wellenleiterstruktur sind in Bild 3.6 gezeigt. Oberhalb des Signalleiters laufen die Feldlinien parallel zur Oberfläche des Wellenleiters. In den Spalträumen zwischen Masse und Signalleiter treffen die Feldlinien hingegen senkrecht auf der Ebene auf [131].

Dieser Unterschied erlaubt eine weitere Verbesserung der selektiven Signalerzeugung am (111)-orientierten Diamant, wie der Vergleich von Bild 3.6 (a) und (b) zeigt. Eine linear polarisierte Mikrowelle, deren Magnetfeld exakt parallel zur Achse eines NV-Zentrums schwingt, kann keine Übergänge zwischen den $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$ Zuständen des Defekts induzieren. Dies wird beim Blick auf den Hamiltonoperator deutlich, der zusätzlich zum externen Magnetfeld B_{ext} auch die Wechselwirkung mit dem Magnetfeldanteil des Mikrowellenfelds $\Omega\hat{\epsilon}$ berücksichtigt [132]:

$$\mathcal{H} = D\hat{S}_z^2 + E(\hat{S}_X^2 - \hat{S}_Y^2) + \gamma B_{ext}\hat{S}_z + \Omega\hat{\epsilon}e^{i\omega}\hat{S} + \text{herm.konj.} \quad (3.6)$$

Die Amplitude des Feldes wird mit Ω bezeichnet, und $\hat{\epsilon}$ legt die Polarisation des Feldes fest. Das Feld oszilliert dabei mit der Frequenz ω . Schwingt das Mikrowellenfeld nur entlang der NV-Achse, besitzt der Ausdruck $\Omega\hat{\epsilon}$ nur eine z-Komponente und der Hamiltonoperator kann daher zu

$$\mathcal{H} = D\hat{S}_z^2 + E(\hat{S}_X^2 - \hat{S}_Y^2) + \gamma B_{ext}\hat{S}_z + \Omega e^{i\omega}\hat{S}_z + \text{herm.konj.} \quad (3.7)$$

vereinfacht werden. Man erkennt, dass $|0\rangle$ und $|\pm 1\rangle$ weiterhin Eigenzustände von \mathcal{H} sind und das Mikrowellenfeld daher keine Übergänge zwischen diesen Zuständen verursacht. Erst wenn $\Omega\hat{\epsilon}$ über x- oder y-Beiträge verfügt, ändert sich die Struktur des Hamiltonoperators \mathcal{H} , sodass Übergänge zwischen den einzelnen Spinzuständen induziert werden können.

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

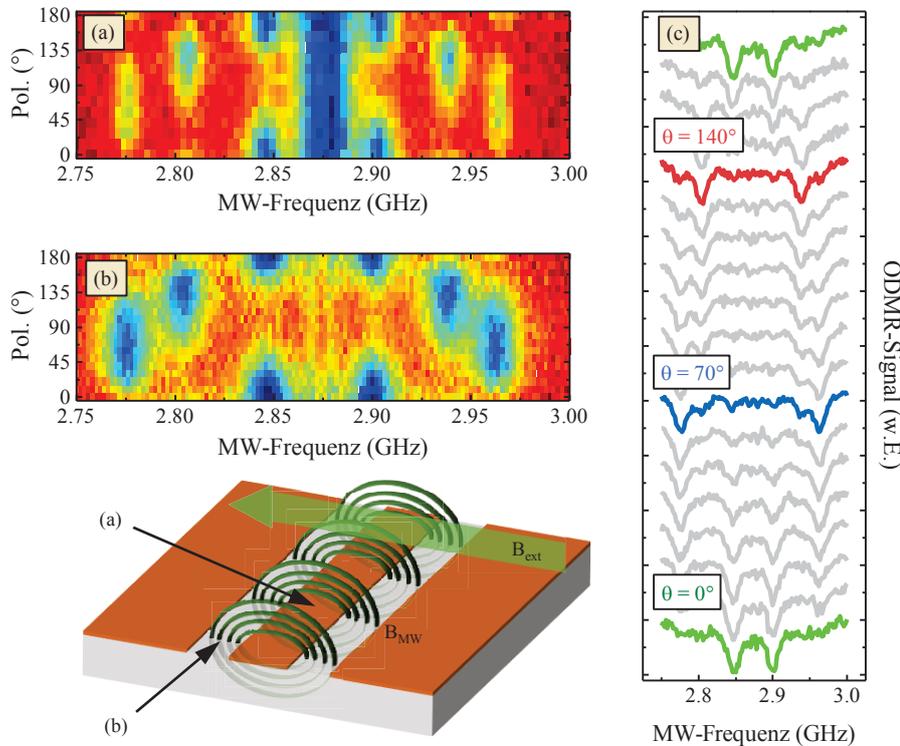


Bild 3.6: (a), (b) ODMR-Spektren in Abhängigkeit der Laserpolarisation an unterschiedlichen Orten relativ zur Wellenleiterstruktur bei identischem externen Magnetfeld entlang der x -Richtung. (c) Die Übersicht über die einzelnen ODMR-Spektren verdeutlicht, wie bei drei ausgezeichneten Winkleinstellungen die Beiträge der verschiedenen NV-Orientierungen die selektiv angeregt werden können. Die Beiträge der aus der Ebene heraus zeigenden NV-Zentren sind kaum noch wahrnehmbar

Entsprechend führt in Bild 3.6 (b) das Mikrowellenfeld, welches aus der Ebene herauszeigt und damit parallel zur aus der Ebene zeigenden NV-Orientierung ist, zu einem extrem verminderten ODMR-Signal dieser NV-Orientierung. Umgekehrt ist der ehemals schwache Beitrag von NV-Zentren, die bevorzugt bei 60° angeregt werden, deutlich stärker ausgeprägt als vorher, da diese nun nicht mehr parallel zum Mikrowellenfeld liegen.

Der abermalige Blick auf die Übersicht der ODMR-Spektren bei den verschiedenen Winkleinstellungen der Laserpolarisation zeigt, dass die einzelnen Komponenten nun erheblich besser voneinander getrennt werden können. Das beste Verhältnis zwischen dem Signal der gewünschte NV-Orientierung und der Unterdrückung der nicht erwünschten Orientierungen findet man bei den Winkeln von 0° , 70° und 140° . Die Abweichungen von der $\pi/3$ -Periodizität, die man für einen (111)-orientierten Diamanten eigentlich erwartet, werden wieder von dem verwendeten Strahlteiler im

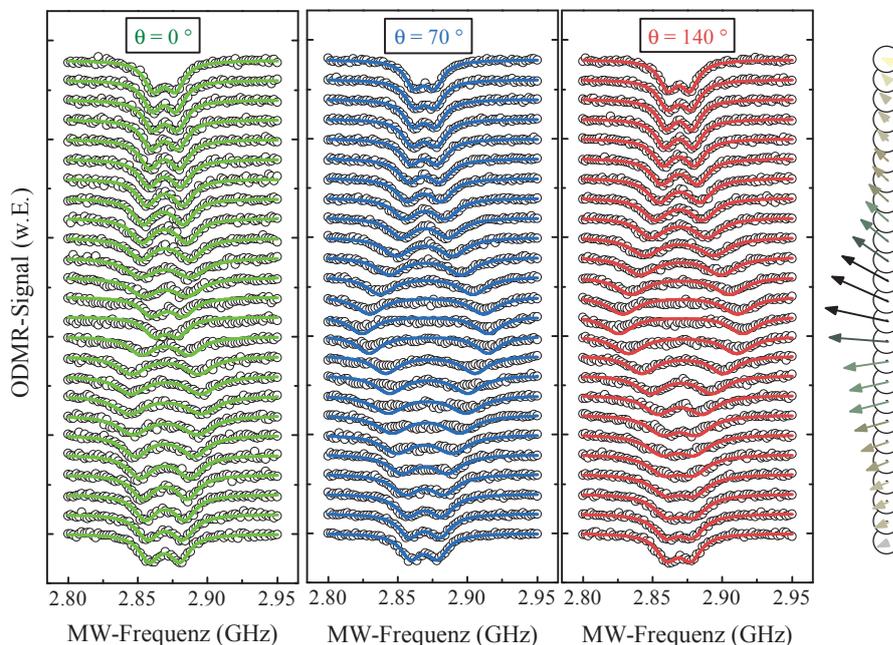


Bild 3.7: Entwicklung der ODMR-Spektren entlang einer Beobachtungstrajektorie für drei Winkeleinstellungen der Laserpolarisation. Am rechten Rand ist die daraus folgende Rekonstruktion des Feldvektors angegeben, wobei die Länge und Farbe jeweils dem Betrag des Vektors entsprechen

Messaufbau verursacht, der unterschiedliche Reflexionskoeffizienten für die s - und p -Komponenten des einfallenden Lichts besitzt.

Bei diesen drei Winkeleinstellungen können nun ODMR-Spektren an verschiedenen Orten relativ zu der Kobaltstruktur aufgenommen werden, und daraus anschließend die Feldverteilung des Streufeldes rekonstruiert werden. Das untersuchte Frequenzintervall reicht von 2800 MHz bis 2950 MHz. Solange der Betrag der Feldkomponente einen Wert von etwa 2 mT nicht übersteigt, fällt die Frequenz des Übergangs in dieses Intervall. Die Methode erlaubt es selbstverständlich auch höhere Feldstärken zu vermessen, wie bereits Bild 3.6 zeigt.

In Bild 3.7 sind zur Veranschaulichung der Messung die ODMR-Spektren an verschiedenen Orten entlang einer Linie senkrecht zur Kobaltstruktur für die drei ausgezeichneten Winkel der Laserpolarisation gezeigt. Der Abstand zwischen den einzelnen Messpunkten beträgt 500 nm. Ohne jede weitere Analyse der Daten ist direkt sichtbar, wie sich das Spektrum der unterschiedlichen Anregungspolarisationen individuell entwickelt, wenn sich der Beobachtungspunkt verändert. Dies untermauert den Erfolg der selektiven Anregung von einzelnen NV-Orientierungen.

Damit kann die Projektion des Magnetfeldvektors entlang der drei nicht parallelen

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

Richtungen innerhalb der Beobachtungsebene bestimmt werden.⁴ Dies reicht aus, um die beiden Komponenten des in der Ebene liegenden Magnetfeldvektors zu bestimmen.

Aufgrund der Ergebnisse von Bild 3.5 sind die Orientierungen der NV-Zentren relativ zum Laborsystem bekannt. So zeigt die NV-Orientierung, die bei einer Winklereinstellung von 70° (im weiteren als NV_{blau} gekennzeichnet) der Laserpolarisation bevorzugt angeregt wird, entlang der x -Achse im Labor. Die anderen Orientierungen sind jeweils um 120° dazu versetzt angeordnet. Damit zeigen folgende Einheitsvektoren entlang der drei NV-Orientierungen:

$$NV_{blau} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad NV_{rot} = \begin{pmatrix} \cos 120^\circ \\ \sin 120^\circ \end{pmatrix}, \quad NV_{grün} = \begin{pmatrix} \cos 240^\circ \\ \sin 240^\circ \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Aus der Verschiebung der Resonanzfrequenz ν gegenüber der Nullfeldresonanz für die NV-Zentren entlang der ersten NV-Orientierung NV_{blau} erhält man so direkt den Betrag der Magnetfeldkomponente B_x (vgl. Gleichung 2.2):

$$|B_x| = \frac{2\pi}{175.929} * \sqrt{\Delta\nu^2 - E^2} \quad (3.9)$$

Das Ergebnis kann anschließend verwendet werden, um den Betrag der Magnetfeldkomponente B_y zu berechnen.

Die Magnetfeldprojektion entlang der Richtung NV_{rot} ergibt sich aus

$$\vec{B}(NV_{rot}) = \frac{\begin{pmatrix} B_x \\ B_y \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos 120^\circ \\ \sin 120^\circ \end{pmatrix}}{\left| \begin{pmatrix} \cos 120^\circ \\ \sin 120^\circ \end{pmatrix} \right|^2} \begin{pmatrix} \cos 120^\circ \\ \sin 120^\circ \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

zu

$$\vec{B}(NV_{rot}) = B_x \cos 120^\circ + B_y \sin 120^\circ. \quad (3.11)$$

⁴Streng genommen ist diese Aussage nicht ganz richtig, da die beobachteten NV-Achsen nicht exakt in der Beobachtungsebene liegen, wie es bei (110)-Oberflächen der Fall wäre, sondern aufgrund der tetraedrischen Orientierung um etwa 19° aus dieser Ebene heraus zeigen. Eine eventuelle z -Komponente des Feldes beeinflusst daher auch die Resonanzfrequenz der $|0\rangle \leftrightarrow |\pm 1\rangle$ -Übergänge und verfälscht so die weitere Auswertung. Da die Streufelder von magnetischen Strukturen wie den an dieser Stelle untersuchten Proben aber innerhalb der Beobachtungsebene parallel zur Ebene verlaufen, wird der besseren Veranschaulichung wegen im weiteren Verlauf eine mögliche z -Komponente des Feldes komplett vernachlässigt.

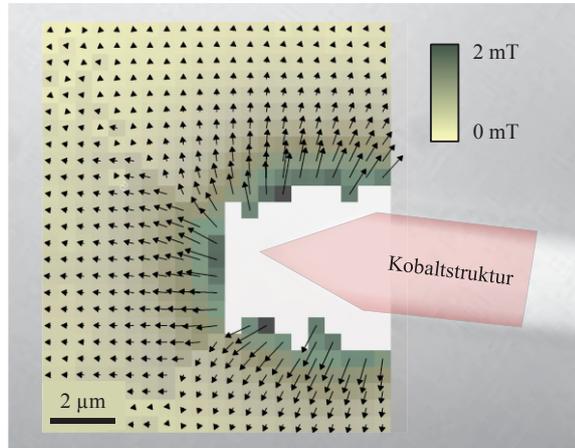


Bild 3.8: Zweidimensionale Karte der Rekonstruktion des Streufeldes der Kobaltstruktur. Die Schrittweite zwischen den einzelnen Messpunkten beträgt 500nm. Das Vorzeichen jedes einzelnen Pfeils ist dabei unter der Annahme einer kontinuierlichen Drehung des Feldvektors ausgewählt worden. Die Messdaten sind unterlegt von einem optischen Bild der Diamantoberfläche. Die Spitze der Kobaltstruktur ist in rot hervorgehoben

Da $|B_x|$ bereits bekannt ist, kann aus der Messung der Resonanzfrequenz entlang der zweiten NV-Orientierung NV_{rot} also $|B_y|$ bestimmt werden:

$$|B_y| = \frac{|\vec{B}(NV_{rot})| - |B_x| \cos 120^\circ}{\sin 120^\circ} \quad (3.12)$$

Die Unsicherheit in den Vorzeichen der einzelnen Beiträge führt dazu, dass insgesamt vier verschiedene Rekonstruktionen für $\vec{B} = (B_x, B_y)$ möglich sind. Jeweils zwei der rekonstruierten Vektoren \vec{B} sind dabei bis auf das Vorzeichen identisch.

Deshalb besitzen nur zwei dieser vier rekonstruierten Werte eine Projektion entlang der dritten NV-Orientierung $NV_{grün}$, die mit dem Messwert $|\vec{B}(NV_{grün})|$ übereinstimmt. Anhand dieses Vergleichs kann das externe Feld bis auf das Vorzeichen eindeutig bestimmt werden.

Unter der Annahme eines kontinuierlichen Verlaufs kann so eine Drehung des Feldvektors entlang der Beobachtungstrajektorie nachvollzogen werden. Die Pfeile am rechten Rand von Bild 3.7 geben die Richtung und den Betrag des rekonstruierten Feldes wieder.

Auf der Basis dieses Prinzips lässt sich eine zweidimensionale Karte des Streufeldes der Kobaltstruktur erstellen. Das Ergebnis ist in Bild 3.8 dargestellt. Die Richtung der Pfeile geben die Richtung des lokalen Feldvektors an. Die Länge der Pfeile gibt ebenso wie die Farbe des entsprechenden Pixels den Absolutwert des lokalen Feldes an.

3.2 Magnetometrie mit linear polarisierten Mikrowellen

Sowohl Richtung als auch Betrag des lokalen Feldes werden dabei über die numerische Anpassung einer Modellfunktion an das auszuwertende ODMR-Spektrum bestimmt. Aus den lokalen Minima der Funktion, die den Resonanzfrequenzen des Übergangs entsprechen, wird dann gemäß Gleichung 3.9 der Wert der Magnetfeldkomponente bestimmt. Aufgrund der Struktur der Gleichung ist es offensichtlich, dass für niedrige externe Felder mit

$$B_{ext} \ll E/g_s\mu_B \quad (3.13)$$

die Resonanzfrequenz kaum von ihrem Nullfeldwert abweicht, was eine Auswertung erheblich verkompliziert.

Um einen Eindruck von der Güte der Auswerteroutine zu vermitteln, ist in Bild 3.9 ein externes Feld parallel zur beobachteten NV-Orientierung angelegt. Die Stärke des Feldes wird zwischen 0 mT und 1.4 mT kontrolliert variiert. An die aufgenommenen ODMR-Spektren kann die Modellfunktion angepasst werden und das Resultat für den so gemessenen Magnetfeldwert mit dem tatsächlichen Wert verglichen werden.

Die Schrittweite, mit der das ODMR-Spektrum abgetastet wird, beträgt innerhalb dieser Messreihe 1 MHz, die Integrationszeit bei jedem Frequenzwert etwa 200 ms.

Man erkennt, dass der Messwert innerhalb eines Fehlerintervalls von etwa ± 0.02 mT für nahezu alle externen Feldwerte übereinstimmt. Bei niedrigen Feldstärken scheinen die Messwerte das externe Feld systematisch zu überschätzen.⁵

Trotz dieser Abweichungen erkennt man, dass die Routine bereits bei einem externen Feld von etwa $50 \mu\text{T}$ eindeutig den Einfluss dieses Feldes erkennt. Damit kann dieser Wert als vorsichtig abgeschätzte untere Grenze der Magnetfeldsensitivität im hier dargestellten Messprinzip gelten. Die räumliche Auflösung ist vom Beugungslimit des Anregungslasers vorgegeben, welcher im Experiment eine Halbwertsbreite von etwa 750 nm hat (siehe Appendix A.1).

Diese Werte sind vergleichbar mit in der Literatur angegebenen Werten, die am NV-Ensemble erreicht wurden, allerdings ein statisches Offset-Feld von 4.5 mT benötigen [94]. Im hier dargestellten Verfahren kann hingegen vollständig auf ein zusätzliches externes Feld verzichtet werden, sodass die ungestörte Antwort einer magnetischen Struktur untersucht werden kann.

Das vorgestellte Prinzip kann jedoch noch weiter verbessert werden, ohne auf die technisch schwierigeren gepulsten Messschemata angewiesen zu sein.

So führt eine Verkleinerung der Frequenzschritte, mit dem das ODMR-Spektrum abgetastet wird, direkt zu einer Verbesserung der Messgenauigkeit. Der Einschub in Bild 3.9 (b) zeigt das Resultat der Auswerteroutine für ODMR-Spektren bei externen Feldern von 1.21 mT bis 1.24 mT. Die Schrittweite der Messung beträgt 1 kHz. Die

⁵Als Ursache für diese Abweichungen kommen Unsicherheiten sowohl im exakten Wert von E als auch des externen Feldes infrage.

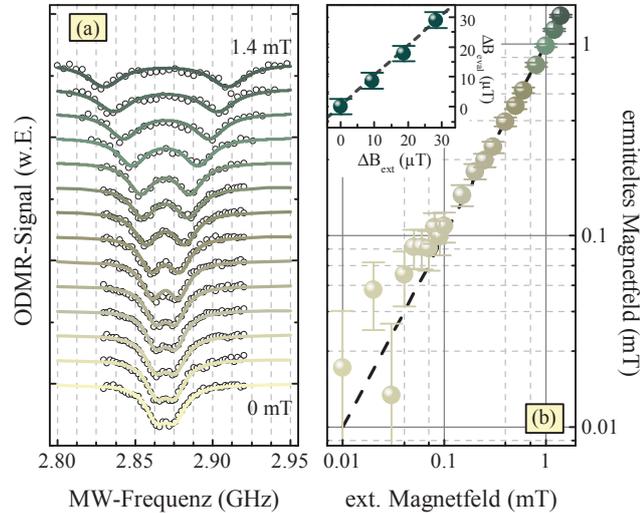


Bild 3.9: (a) Entwicklung des ODMR-Spektrums (Datenpunkte in schwarz, Modellfunktion als farbige Linie) einer NV-Orientierung im veränderten externen Magnetfeld, von 0 mT (hell) bis 1.4 mT (dunkel). (b) Zusammenhang zwischen tatsächlichem externen Feld und Ergebnis der Auswerteroutine (farbige Punkte) an den Daten von (a). Die gestrichelte schwarze Linie entspricht der perfekten Übereinstimmung zwischen externem Feldwert und Auswertung. Bei niedrigen Feldwerten nehmen die relativen Fehler erheblich zu und die Auswertung neigt dazu, den Wert des externen Feldes zu überschätzen. Einschub in (b): Vergleich zwischen den Ergebnissen der Auswerteroutine für vier externe Felder zwischen 1.21 mT und 1.24 mT bei höherer Abtastfrequenz der Spektren. Für weitere Ausführungen siehe Text

erwartete Verschiebung des Spektrums um $10 \mu T$ kann in den Messungen sehr gut bestätigt werden.

Eine Reduzierung der transversalen Kristallfeldaufspaltung E führt zu einer stärkeren Verschiebung der Resonanzfrequenz in niedrigen externen Feldern. Im hier verwendeten Diamant findet man einen Wert von $E \approx 6 \text{ MHz}$. Eine Verringerung auf für CVD-Diamanten typische Werte von etwa 1 MHz sollte dazu führen, dass Feldwerte von wenigen μT zuverlässig detektiert werden können, bei einer vergleichbaren Messzeit pro Datenpunkt wie im hier vorgestellten Experiment ($t_{Int} = 200 \text{ ms}$) und ohne auf ein externes Feld oder gepulste Messschemata angewiesen zu sein.

Die Ausdehnung des Beobachtungsvolumen gibt nicht nur die räumliche Auflösung der Messung vor, sondern verkompliziert auch das Auswerten von Feldgeometrien, bei denen die Feldstärke auf der Längenskala des Beobachtungsvolumen stark variiert.

Zur Verdeutlichung sei auf eine der Kurven aus Bild 3.7 verwiesen, bei denen man eine hohe Feldstärke erkennt. Obwohl die Auswerteroutine noch vernünftige Ergebnisse liefert, sind bereits leichte Abweichungen zwischen dem Datensatz und der Mo-

dellfunktion erkennbar.

Dieser Trend verstärkt sich noch, wenn man Datensätze von noch näher an der Struktur liegenden Messpunkten vergleicht. Der Grund dafür ist, dass der Feldgradient innerhalb des Beobachtungsvolumen so stark ist, dass unterschiedliche, aber gleichzeitig beobachtete NV-Zentren stark unterschiedliche Feldstärken verspüren. Als Folge zeigt das gemessene ODMR-Spektrum eine sehr breite Resonanzstruktur mit deutlich niedrigerer Amplitude. Dies macht eine sinnvolle Auswertung nur mit erheblich höherem Messaufwand durchführbar.

Als Ausweg kann die Untersuchung von einzelnen NV-Zentren im Diamantgitter dienen, bei dem nur das lokale Feld am Ort des Defekts Auswirkungen auf das ODMR-Spektrum hat. Ein Diamant, in dem einzelne NV-Zentren ausreichend weit voneinander entfernt liegen, dass eine getrennte optische Adressierung in einem vergleichbaren Aufbau möglich ist, erlaubt allerdings nur ein Abtasten des zu untersuchenden Magnetfelds an den Orten der einzelnen NV-Zentren. Variationen der Magnetisierung oder des Streufeldes können daher auch in diesem Fall nur auf einer Längenskala beobachtet werden, die größer als das optische Beobachtungsvolumen ist.

Die Kapitel 5 und 6 handeln deshalb davon, wie dieses Limit durch die Nanostrukturierung des Diamanten und den Einsatz von Rasterkrafttechniken umgangen werden kann.

Weiterhin werden während der Messung die NV-Zentren mit einem MW-Feld manipuliert, das von einem unter dem Diamant liegenden, koplanaren Wellenleiter an die Probe herangeführt wurde. In dieser Anordnung liegt die Kobaltstruktur immer zwischen der MW-Quelle und dem optischen Zugang. Dies macht eine Untersuchung der Magnetisierung innerhalb der Struktur schwierig, da NV-Zentren, die direkt ober- oder unterhalb der Struktur liegen, immer entweder von der Mikrowelle oder dem Laser abgeschirmt sind. Deshalb kann bspw. die Domänenstruktur des Ferromagneten nicht direkt untersucht werden.

Um diese oder ähnliche Fragen beantworten zu können, darf in einem geeigneten Experiment das MW-Feld nicht von einem hinter der Struktur liegenden Wellenleiter oder sonstigem MW-Emitter ausgesendet werden. Mit der Verwendung der in Kapitel 4 entwickelten Antenne kann diese Randbedingungen erfüllt werden.

Eine weitere Einschränkung bildet die Ununterscheidbarkeit von Magnetfeldern gleichen Betrags, aber unterschiedlicher Vorzeichen. Die ODMR-Spektren in den Bildern 3.7 oder 3.9 liefern keinerlei Aussage über das Vorzeichen des Magnetfelds an den untersuchten Orten. Daher ist die Richtung jedes einzelnen der Vektoren in Bild 3.8 nur eine von zwei möglichen lokalen Magnetfeldorientierungen, die zu den gleichen ODMR-Signalen führen. Das Bild wurde daher unter der Annahme eines kontinuierlichen Verlaufs einer aus der Spitze der Mikrostruktur heraus zeigenden Magnetisierung erstellt.

Im folgenden Kapitel 3.3 wird ein möglicher Ausweg aufgezeigt, wie man unter

Ausnutzung der Mikrowellenpolarisierung das Vorzeichen des Magnetfeldvektors bestimmen kann, ohne wieder auf das zusätzliche Offset-Feld mit all den einhergehenden Nachteilen angewiesen zu sein.

3.3 Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen

Trotz der Möglichkeit, mithilfe der unterschiedlichen NV-Orientierungen direkt die einzelnen Komponenten eines externen Magnetfeldes zu vermessen, ist vollständige Vektormagnetometrie noch nicht möglich: Das Vorzeichen der einzelnen räumlichen Komponenten bleibt unbekannt. Die Zeeman-Aufspaltung ist für die Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ immer gleich groß (siehe Gleichung 2.1), sodass die beobachtete Resonanzfrequenz keinerlei Aussage darüber liefert, ob das Magnetfeld parallel oder antiparallel zur NV-Achse orientiert ist. Anders gesagt, es fehlt die Möglichkeit zwischen den Übergängen $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ und $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ zu unterscheiden. Diese zusätzliche Information kann jedoch gewonnen werden, wenn es gelingt, die NV-Zentren mit einer Mikrowelle zu manipulieren, die zirkular oder allgemein elliptisch polarisiert ist.

Das fundamentale Prinzip der Drehimpulserhaltung sorgt dafür, dass einzelne Photonen von zirkular polarisierten elektromagnetischen Wechselfeldern nur Übergänge zwischen zwei Energieniveaus bewirken können, während derer sich der Gesamtdrehimpuls J um $|\Delta J| = 1$ ändern kann, wie zahlreiche Beispiele aus der Laser- [133] sowie der Festkörperspektroskopie [134] belegen. Die im ODMR-Experiment beobachteten Übergänge von $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ und von $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ sind genau solche Übergänge.

Rechtszirkular oder σ^+ -polarisierter Anregung schreibt man Übergänge mit $\Delta m_S = +1$ zu; linkszirkular oder σ^- -polarisierter Anregung Übergänge mit $\Delta m_S = -1$. Eine lineare Polarisation kann als Resultat der Kombination aus einer rechts- und einer linkszirkular polarisierten Welle interpretiert werden, und daher sowohl $\Delta m_S = +1$ - als auch $\Delta m_S = -1$ -Übergänge induzieren.

Da die Mikrowellenfelder für die ODMR-Messungen in den Kapiteln 2, 3.1 sowie 3.2 aus einem planaren Wellenleiter ausgekoppelt wurden und die Felder in diesen immer linear polarisiert vorliegen [131], sind in den experimentellen Daten dieser Kapitel die Signale für die $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ - und $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ -Übergänge gleichermaßen ausgeprägt.

Verfügt das Mikrowellenfeld jedoch über eine elliptische Polarisation, sind die beiden σ^\pm -Komponenten der Anregung unterschiedlich stark. Dann muss sich die Signalstärke der $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ - und $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ -Übergänge im Experiment ändern.

Man betrachte zur theoretischen Begründung wieder den Spin-Hamiltonoperator in dem zusätzlich die Wechselwirkung mit einem externen Mikrowellenfeld berücksichtigt ist [132]:

$$\mathcal{H} = D\hat{S}_z^2 + \gamma B\hat{S}_z + \hat{\Omega}\hat{\epsilon}e^{i\omega+\phi_s}\hat{S} + \text{herm.konj.} \quad (3.14)$$

3.3 Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen

Das Magnetfeld der Mikrowelle Ω mit der Frequenz ω und der globalen Phase ϕ_g soll dabei nur in der x- und der y-Richtung schwingen, was durch den entsprechenden Polarisationsvektor $\hat{\epsilon}$ mit den Einträgen $(1, e^{i\phi}, 0)$ zum Ausdruck kommt. Sind der x- und y-Anteil gleich stark, kann Ω als Skalar betrachtet werden. Die beiden Terme, die die Wechselwirkung mit dem Mikrowellenfeld beschreiben, können dann umformuliert werden zu

$$\mathcal{H}_{MW} = \Omega(\cos(\omega t)\hat{S}_x + \cos(\omega t + \phi)\hat{S}_y). \quad (3.15)$$

Nach einem Wechsel in ein rotierendes Bezugssystem kann der Hamiltonoperator neu formuliert werden:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}' = & \begin{bmatrix} \Delta_- & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta_+ \end{bmatrix} + \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & \epsilon_- & 0 \\ \epsilon_-^* & 0 & \epsilon_+ \\ 0 & \epsilon_+^* & 0 \end{bmatrix} \\ & + \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & e^{-2i\omega t}\epsilon_+ & 0 \\ e^{2i\omega t}\epsilon_{*+} & 0 & e^{2i\omega t}\epsilon_- \\ 0 & e^{-2i\omega t}\epsilon_{*+} & 0 \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (3.16)$$

mit

$$\Delta_{\pm} = D \pm \gamma B_{ext} - \omega, \quad (3.17)$$

$$\epsilon_{\pm} = \frac{1}{2} e^{\mp i\phi_g} (1 - i e^{\pm i\phi}). \quad (3.18)$$

Die dazu notwendigen Schritte sind ausführlich in Appendix A.3 erläutert.

Betrachtet man den Fall einer zirkular polarisierten Welle in Gleichung 3.15, ergibt sich für die Phase ϕ ein Wert von $\phi = \pm 90^\circ$, wobei das negative Vorzeichen für ein rechtszirkular, das positive Vorzeichen für ein linkszirkular polarisiertes MW-Feld steht. Daraus ergibt sich das folgende Schema:

Tabelle 1: Polarisationsabhängige Koeffizienten im Hamiltonoperator \mathcal{H}'

Polarisation:	rechtszirkular	linkszirkular
$ \epsilon_+ =$	1	0
$ \epsilon_- =$	0	1

Für den Fall von niedrigen Feldstärken ist die Schwingungsfrequenz des externen Feldes erheblich kleiner als die Rabi-Frequenz des Systems, also $\Omega_{Rabi} \ll \omega$. Dies bedeutet für den dritten Term in Gleichung 3.16, dass während eines Übergangs

$|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ die $e^{2i\omega t}$ -Komponente heftig oszilliert. Sie mittelt sich so zu Null und kann daher vernachlässigt werden. Diese Näherung bezeichnet man i. A. als Rotating Wave Approximation.

Der verbleibende Hamiltonoperator schreibt sich als

$$\mathcal{H}_{RWA} = \begin{bmatrix} \Delta_- & (\Omega/\sqrt{2})\varepsilon_- & 0 \\ (\Omega/\sqrt{2})\varepsilon_-^* & 0 & (\Omega/\sqrt{2})\varepsilon_+ \\ 0 & (\Omega/\sqrt{2})\varepsilon_+^* & \Delta_+ \end{bmatrix}. \quad (3.19)$$

Man erkennt an Gleichung 3.19, dass die Übergänge zwischen $|0\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ von den Beiträgen mit ε_- induziert werden, wohingegen die Übergänge zwischen $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ von den Beiträgen mit ε_+ verursacht werden. Unter Berücksichtigung von Tabelle 1 wird daher unter perfekt zirkular polarisierter Anregung nur jeweils einer der beiden Übergänge angeregt. Bei elliptischer Anregung wird ein Übergang bevorzugt angeregt und ist daher im Spektrum mit größerer Signalstärke zu erkennen.

Zur Veranschaulichung sind in Bild 3.10 zwei ODMR-Spektren im (100)-Diamant gezeigt, die bei identischen Magnetfeldstärken, aber mit unterschiedlichen Vorzeichen der Felder aufgenommen worden sind. Das Magnetfeld ist wieder so gewählt, dass entlang der vier möglichen NV-Achsen unterschiedlich lange Magnetfeldprojektionen entstehen. Allerdings wird dabei das Mikrowellenfeld nicht wie in den vorangegangenen Kapiteln über ein planaren Wellenleiter zum Diamanten gebracht. Stattdessen wird ein Koaxialkabel mit einem Draht kurzgeschlossen, und der Diamant mit diesem Kabel umwickelt.

Dabei entstehen sich kreuzende Drahtschleifen um den Diamant herum, entlang derer sich das Magnetfeld der MW mit unterschiedlichen Phasen ausbreitet. Die Unterschiede in den Phasen resultieren aus den unterschiedlichen Distanzen, die das Signal bis in die verschiedenen Schleifen zurückzulegen hat. Entspricht der Wegunterschied gerade einem ungeradzahligem Vielfachen eines Viertels der Wellenlänge λ_{MW} und kreuzen sich die beiden Drahtschleifen im rechten Winkel, lässt sich damit oberhalb der Kreuzung ein zirkular polarisiertes elektromagnetisches Feld erzeugen.

Da diese Bedingungen nur sehr schwierig exakt umzusetzen sind, ist man im Experiment häufig mit einer elliptischen Polarisation konfrontiert. Dadurch beobachtet man immer noch alle acht Übergänge im Ensemble. Dennoch ist offensichtlich, wie sich das Intensitätsverhältnis zwischen den $|0\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ - und den $|0\rangle \leftrightarrow |-1\rangle$ -Übergängen umkehrt, wenn das Magnetfeld sein Vorzeichen wechselt, das MW-Feld sowie die Laserpolarisation jedoch unverändert bleiben.

Besonders deutlich tritt dies für zwei der vier NV-Orientierungen in Bild 3.10 auf. Für die beiden anderen Orientierungen ist der Effekt weniger stark ausgeprägt, da deren Übergänge für beide Magnetfeldorientierungen nur ein schwaches ODMR-Signal liefern. Dies ist eine Folge der Laserpolarisation, die so gewählt ist, dass zwei der vier NV-Orientierungen ein maximales Signal liefern (vgl. Bild 3.1).

3.3 Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen

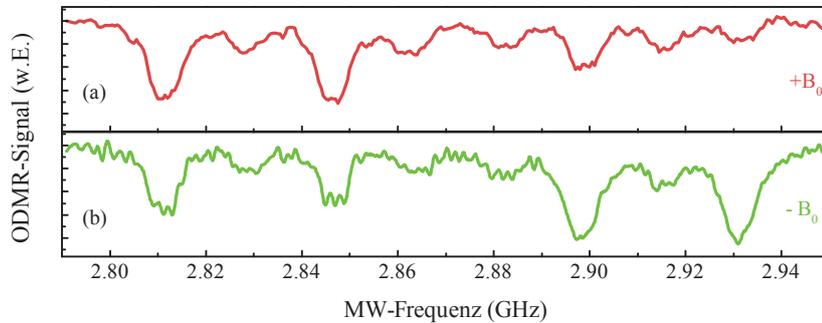


Bild 3.10: (a) ODMR-Signal im externen Magnetfeld B_0 . Besonders stark sind die Resonanzen bei ca. 2.81 GHz und bei 2.85 GHz ausgeprägt. (b) ODMR-Signal im externen Magnetfeld $-B_0$. Die in Teilbild (a) kaum sichtbaren Resonanzen bei ca. 2.90 GHz und bei 2.93 GHz dominieren nun das ODMR-Spektrum. Die weiteren vier Resonanzen bei etwa 2.83 GHz, 2.86 GHz, 2.88 GHz und bei 2.92 GHz sind bei beiden Magnetfeldorientierung stark unterdrückt, da aufgrund der gewählten Laserpolarisation kaum NV-Zentren der entsprechenden Orientierung angeregt werden (vgl. Bild 3.1)

Die unterschiedlichen Signalstärken der unterschiedlichen NV-Orientierungen zeigen, dass die Kombination der jeweiligen selektiven Anregung durch eine geeignete Wahl der Laserpolarisation und MW-Polarisation ohne weiteres möglich ist.

Eine erneute Variation des Winkels der Anregungspolarisation von 0° bis 180° wie in Bild 3.11 verdeutlicht dies. Da die Polarisation der MW-Anregung durch das Wickeln des Drahts fest vorgegeben ist und daher nicht verändert werden kann, wurde stattdessen in einer zweiten Messung die Richtung des externen Magnetfelds umgekehrt. Nach der Umkehr des externen Feldes zeigen die Übergänge ein starkes Signal, welche vorher nur einen schwachen ODMR-Kontrast zeigten, und umgekehrt.

Trotz der gesicherten Erkenntnis, dass ein zirkular polarisiertes MW-Feld selektiv anregen kann, bleiben Unsicherheiten bei der Interpretation der Daten von Bild 3.11 bestehen.

Der Spin des Zustands $|1\rangle$ sollte für niedrige externe Felder immer entlang der NV-Achse in die Richtung des Stickstoffions zeigen, egal ob diese parallel oder antiparallel zur NV-Achse orientiert sind. Am Beispiel der NV-Zentren entlang der $[111]$ -Richtung bedeutet dies, dass der $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ -Übergang für parallele Felder zu höheren Energien verschoben wird, und für antiparallele Felder zu niedrigeren Energien.

Allerdings sollten NV-Zentren im Kristall nicht nur in $[111]$ -Richtung existieren, sondern in gleicher Häufigkeit auch in $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ -Richtung.

Aus diesem Grund sollte es nahezu genauso viele NV-Zentren geben, die bei der Resonanzfrequenz $2.87\text{ GHz} - \nu$ ihren $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ -Übergang haben, wie es auch Zentren gibt, die dort ihren $|0\rangle \rightarrow | -1\rangle$ -Übergang haben. Das identische Argument gilt für die Frequenz $2.87\text{ GHz} + \nu$. Daher sollte das Spektrum trotz der polarisierten MW

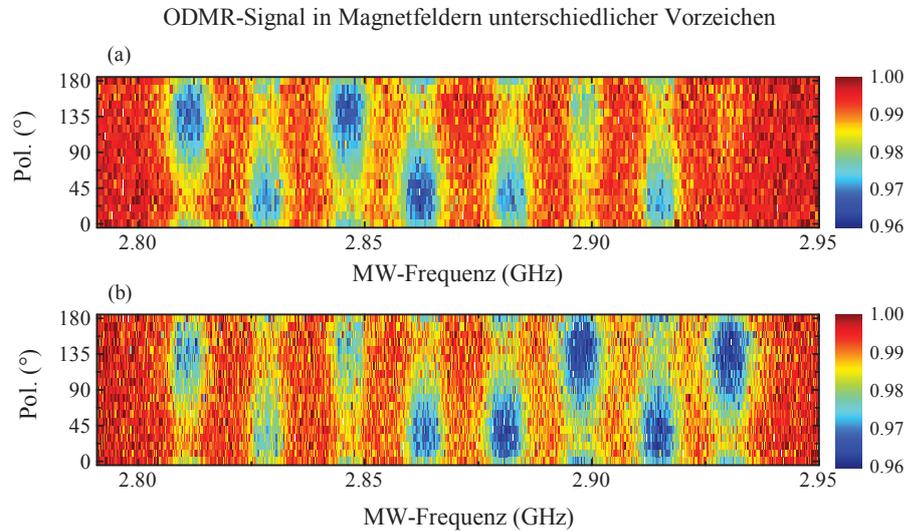


Bild 3.11: (a) ODMR-Signal in Abhängigkeit der Polarisationsrichtung des Anregungslasers im externen Magnetfeld B_0 . Die vier Resonanzen, die im Vergleich zur Nullfeldresonanz bei etwa 2.87 GHz zu niedrigeren Frequenzen verschoben sind, dominieren deutlich die Spektren. (b) ODMR-Signal im externen Magnetfeld $-B_0$. In diesem Fall dominieren die vier Resonanzen die Spektren, die im Vergleich zur Nullfeldresonanz bei etwa 2.87 GHz zu höheren Frequenzen verschoben sind

bei beiden Resonanzfrequenzen ein gleichermaßen starkes ODMR-Signal zeigen. Die Unterschiede in den Signalstärken der verschiedenen Übergänge deuten jedoch daraufhin, dass sich die NV-Achsen entlang einer bevorzugten Richtung ausrichten.

Gestützt wird die These der bevorzugten Ausrichtung der NV-Achsen von weiteren Messreihen. Dazu wird das externe Feld um einen Winkel von etwa 60° um die z -Achse und um 30° mehr aus der x - y -Ebene herausgedreht. Die Bilder 3.12 (a) und (b) zeigen das Resultat.

Das Verhalten kann gut reproduziert werden, wenn man eine bevorzugte Ausrichtung der NV-Achsen entlang der Magnetfeldrichtung aus Bild 3.11 annimmt. Dafür spricht, dass in jenen Daten immer ein kompletter Ast der Übergänge bevorzugt angeregt wird. Der Vektor, der entlang der NV-Achse zeigt und die bevorzugte Ausrichtung dieser Achse anzeigt, lässt sich aus der Projektion des Magnetfeldvektors \vec{B}_0 aus diesem Datensatz erhalten. Am Beispiel der $[111]$ -Richtung bedeutet dies:

3.3 Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen

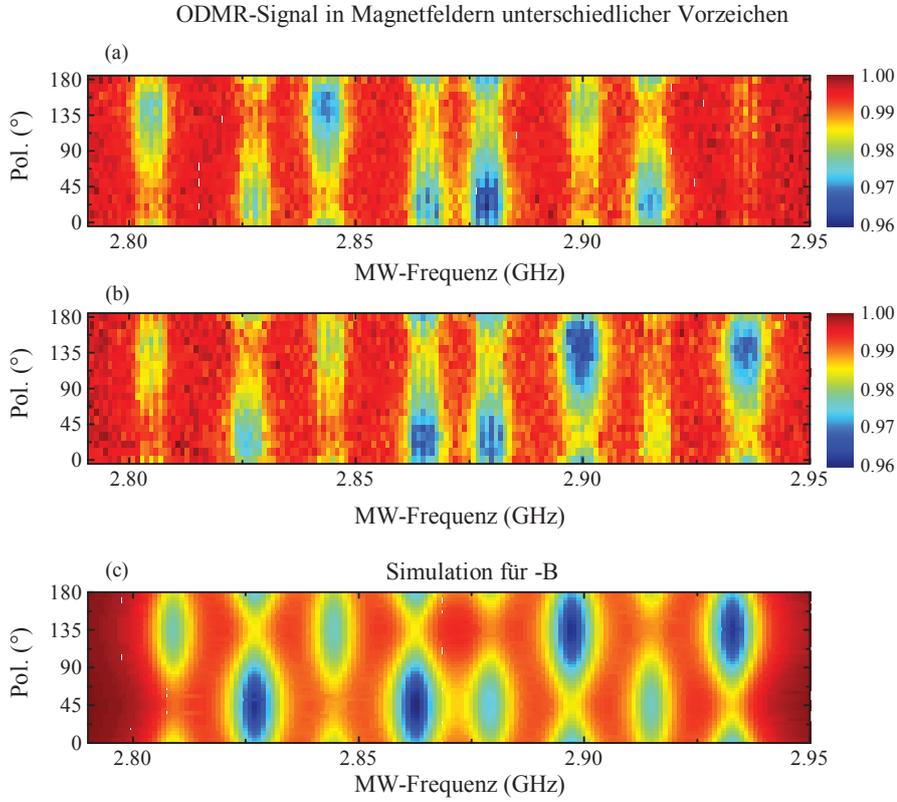


Bild 3.12: (a) ODMR-Signal in Abhängigkeit der Polarisationsrichtung des Anregungslasers im externen Magnetfeld B_0 . (b) ODMR-Signal im externen Magnetfeld $-B_0$. (c) Simulation der ODMR-Spektren für verschiedene Laserpolarisationen unter der Annahme einer bevorzugten Ausrichtung der NV-Zentren

$$NV_{111,|1\rangle} = \frac{\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} B_{0,x} \\ B_{0,y} \\ B_{0,z} \end{pmatrix}}{\left| \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \right|^2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

Die Richtung, in die der Spin des Zustands $|1\rangle$ bevorzugt zeigt, ist gleichbedeutend mit dieser Richtung, weswegen der Vektor $NV_{111,|1\rangle}$ den zusätzlichen Index trägt.

Vergleicht man nun, ob die Projektion eines anderen externen Magnetfelds \vec{B} für diese NV-Orientierung

$$B_{111} = \frac{\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{pmatrix}}{\left| \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \right|^2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.21)$$

parallel oder antiparallel zu $NV_{111,|1\rangle}$ verläuft, lässt sich vorhersagen, ob der zu dieser NV-Orientierung gehörende $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ -Übergang zu höheren oder niedrigeren Energien verschoben ist. Da das MW-Feld nur diesen Übergang anregt, muss im ODMR-Spektrum an der entsprechenden Stelle ein starkes Signal zu beobachten sein.

Bild 3.12 (c) zeigt eine Simulation des ODMR-Signals, die unter Berücksichtigung der Effekte der Variation der Laserpolarisation sowie der MW-Polarisation und Orientierung des externen Magnetfelds zur bevorzugten Richtung der NV-Achsen erstellt wurde. Die Simulation kann alle Hauptmerkmale des ODMR-Signals qualitativ wiedergeben.

Dies gelingt auch für weitere Magnetfeldorientierungen. Stellvertretend wird noch Bild 3.13 gezeigt, in dem der Fall dargestellt wird, dass drei der $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ -Übergänge in eine Richtung verschoben sind. Auch dieser Fall kann in der Simulation reproduziert werden.

Eventuell sind die Daten daher ein Anzeichen dafür, dass es tatsächlich eine bevorzugte Orientierung der NV-Achsen im untersuchten Kristall gibt. Da der Kristall nach dem Erwerb nicht weiter behandelt wurde, kann sich diese Bevorzugung nur während des Wachstums ausgebildet haben. Es ist bekannt, dass während des CVD-Wachstums unterschiedliche Kristallachsen für die Bildung von NV-Zentren bevorzugt werden [122, 127, 135, 136].

Weiterhin wurde kürzlich gezeigt, dass es bei der Herstellung von (111)-orientierten Diamantschichten mittels Mikrowellen-Plasma-assistiertem CVD-Wachstum auf HP-HT-Diamantsubstrat neben der bevorzugten Kristallachse zusätzlich eine Bevorzugung der Anordnung des Stickstoffs und der Fehlstelle gibt [137]. Etwa 75% der NV-Zentren waren so ausgerichtet, dass zunächst das Stickstoffatom eingebaut wird und erst danach die Fehlstelle.

Ob es unter bestimmten Wachstumsbedingungen eine bevorzugte Anordnung von Stickstoff und der Fehlstelle auch in (100)-orientiertem Diamant geben kann, wird in der Literatur jedoch bislang nicht diskutiert.

Gibt es eine solche Bevorzugung, ist es von höchstem Interesse, ob es die identische Bevorzugung auch in (110)- oder (111)-orientiertem Diamant geben kann, ohne dabei gleichzeitig die Bevorzugung der NV-Orientierung entlang einer der Kristallachsen zu erhalten. In diesem Fall kann über die Laserpolarisation eine einzelne NV-Orientierung im Kristall adressiert werden, um die Komponente eines externen Ma-

3.3 Magnetometrie mit zirkular polarisierten Mikrowellen

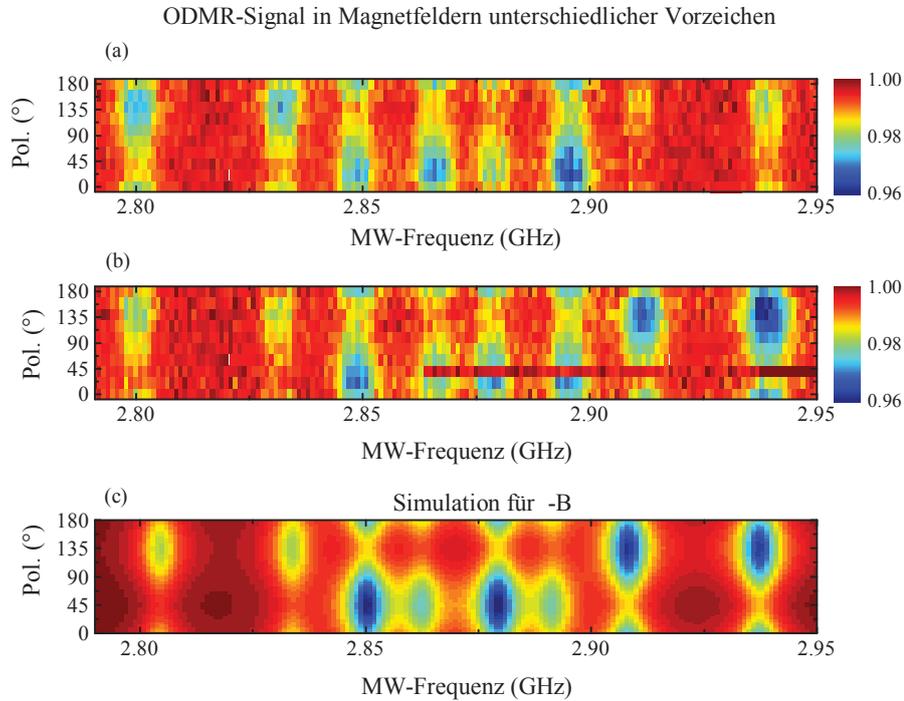


Bild 3.13: (a) ODMR-Signal in Abhängigkeit der Polarisationsrichtung des Anregungslasers im externen Magnetfeld B_0 . (b) ODMR-Signal im externen Magnetfeld $-B_0$. Beim ODMR-Spektrum mit einer Laserpolarisation von 40° führte eine Fehlfunktion in der Stromversorgung der Magnetspulen zu der beobachteten Abweichung. (c) Simulation der ODMR-Spektren für verschiedene Laserpolarisationen unter der Annahme einer bevorzugten Ausrichtung der NV-Zentren

gnetfelds über eine ODMR-Messung zu bestimmen. Dabei legt die gewählte MW-Polarisation fest, ob man die $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ - oder $|0\rangle \rightarrow |-1\rangle$ -Übergänge beobachtet, sodass man direkt Kenntnis über das Vorzeichen der Komponente gewinnt.

Teil II

Entwicklungsschritte hin zur Rastermagnetometrie

Kapitel 4

Entwicklung einer Mikrowellenantenne

Der Ansatz für die Erzeugung eines Mikrowellenfeldes (MW-Feld) zur Manipulation der Stickstoff-Fehlstellen- (*engl.* Nitrogen-Vacancy-) Zentren bestand in den vorangegangenen Kapiteln dieser Arbeit darin, einen Mikrowellenleiter in unmittelbare Nähe des Beobachtungspunktes zu bringen. Egal, ob es sich dabei um ein kurzgeschlossenes Koaxialkabel oder einen 50Ω -abgeschlossenen koplanaren Wellenleiter handelte, in keinem der Fälle war der Leiter darauf optimiert, das Mikrowellenfeld effektiv an den Ort der beobachteten NV-Zentren zu übertragen. Das folgende Kapitel widmet sich daher den Überlegungen zur Entwicklung einer Antenne, die diese Anforderung erfüllt sowie deren Realisierung.

4.1 Aufgabenstellung zur Entwicklung einer Antenne

Die verschiedenen technischen Umsetzungen für die Erzeugung von Mikrowellenfeldern am Ort der NV-Zentren sind extrem vielfältig. Die Ideen reichen dabei von einfachen Lösungen wie Drähten [138] über Drahtspulen mit wenigen Wicklungen [139], Wendelantennen [101], koplanaren Wellenleitern [140] bis hin zu ausgefeilten, direkt auf den Diamant mikrostrukturierten Leiterbahnen [94] sowie aufwändig berechneten Leiterplattenresonatoren [141].

Gemeinsam ist allen Ideen die Absicht, die NV-Zentren mit einem ausreichend starken Mikrowellenfeld zu manipulieren. Dabei gibt die geplante Anwendung der NV-Zentren vor, wie komplex die Anforderungen an die Antenne sind. Solange der Wärmeeintrag durch ohmsche Verluste sowie die Positionierung der Antenne relativ zum NV-Zentrum unkritisch sind, ist ein simpler Draht mit einem Durchmesser von wenigen Mikrometern in Nähe des Beobachtungsvolumens eine gute Lösung. Eine Kombination von üblichen MW-Signalquellen mit den entsprechenden Verstärkern ermöglicht bereits Feldstärken, die zu Rabi-Frequenzen im Bereich von bis zu 100MHz führen [114].

Sollen die NV-Zentren hingegen in einem Experiment als nanostrukturierter, lokaler Magnetfeldsensor im kryogenen Umfeld dienen, steigen die Anforderungen jedoch erheblich.

Eine exakte (sub- μm) Positionierung des Diamanten verlangt entweder nach einer

4.1 Aufgabenstellung zur Entwicklung einer Antenne

ebenso exakten Positionierung der Antenne oder nach einer Feldverteilung, die homogen in jenem Bereich ist, innerhalb dessen sich die Position der NV-Zentren während des Experiments ändert. Andernfalls wirken auf die NV-Zentren an unterschiedlichen Positionen während des Experiments unterschiedliche Feldintensitäten.

Wird im Experiment bereits eine Positioniereinheit für den Magnetfeldsensor und eine andere für das zu untersuchende Objekt verwendet, verbietet sich oft der Einsatz einer weiteren Positioniereinheit, weswegen der zweite Ansatz günstiger erscheint.

In der NV-basierten Magnetometrie setzt man häufig auf Nano- oder nanostrukturierte Diamanten, um eine Magnetfeldauflösung unterhalb des optischen Auflösungsvermögens zu erhalten [34,44]. In diesem Fall erlauben es die räumlichen Abmessungen des Diamanten nicht, einen Mikrowellenleiter direkt auf oder an den Diamanten zu platzieren. Deshalb muss die Mikrowellenantenne abseits des Diamanten platziert werden.

Soll außerdem bei kryogenen Temperaturen gearbeitet werden, ergibt sich als zusätzliche Bedingung, dass die Kühlleistung des Systems in der Regel begrenzt ist, und daher der Wärmeeintrag durch die Mikrowellen möglichst gering ausfallen soll. Eine Impedanzanpassung der Antenne an den verwendeten Wellenleiter sowie eine hohe Effizienz der Mikrowelleneinstrahlung von der Antenne auf das NV-Zentrum minimieren den Wärmeeintrag.

Die Impedanzanpassung der Antenne kann durch den komplexen Reflexionsfaktor Γ der Antenne ausgedrückt werden. Dieser gibt das Verhältnis zwischen den Feldamplituden einer einlaufenden Welle a_i der Frequenz ω und der an einer Lastimpedanz reflektierten Welle b_i an [142]:

$$\Gamma = \frac{b_i(\omega)}{a_i(\omega)} \quad (4.1)$$

In der Netzwerkanalyse werden Parameter wie Reflexion und Transmission von Schaltungen oder Bauteilen durch eine Streumatrix (S-Matrix) zusammengefasst. Im Beispiel eines n -Tors (Bauteil mit n Anschlüssen) ergibt sich eine $n \times n$ -Matrix. Dabei gibt der Eintrag S_{ij} (Streuparameter) das Verhältnis zwischen den Feldamplituden des am Anschluss j auslaufenden Signals und des an Anschluss i einlaufenden Signals an. Der Streuparameter S_{11} ist daher für den Fall einer einzelnen Antenne identisch mit dem komplexen Reflexionsfaktor. Üblicherweise wird S_{11} in Dezibel (dB) angegeben, daher ergibt sich

$$S_{11} = 10 \log \Gamma^2. \quad (4.2)$$

Die Effizienz der Mikrowelleneinstrahlung im Fernfeld wird üblicherweise durch den Antennengewinn G quantifiziert, welcher die Richtwirkung der Antenne beschreibt. Der Antennengewinn berechnet sich durch

$$G = \frac{S_{r,max}}{S_{dipol}}, \quad (4.3)$$

wobei $S_{r,max}$ die maximal abgestrahlte Leistungsdichte innerhalb eines bestimmten Raumwinkelbereichs und S_{dipol} die Leistungsdichte einer Halbwellendipolantenne ist.

Eine Reihe von möglichen Antennenformen, die einen hohen Gewinn G bei niedrigen S_{11} im gewünschten Frequenzbereich liefern, haben jedoch Abmessungen, die nicht in den verfügbaren Raum innerhalb der Kryostatenumgebung passen [143].

Auf diesen Überlegungen basierend erweist sich eine auf eine zweiseitige Leiterplatte gedruckte Antennenstruktur als vielversprechend. Beispiele solcher Antennen für andere Frequenzbereiche lassen sich zuhauf finden.⁶ Im Folgenden wird ein geeignet erscheinendes Design für den von uns benötigten Frequenzbereich angepasst, indem der S_{11} -Wert für bestimmte Geometrievariationen simuliert und dieser anschließend an der echten Antenne experimentell überprüft wird.

4.2 Antennendesign, Simulation und Netzwerkanalyse

Eine Auswahl von technischen Zeichnungen der Antennenstruktur aus unterschiedlichen Blickwinkeln zeigt Bild 4.1 (a) - (c). Die Antenne besteht aus unterschiedlich bedruckter Vorder- und Rückseite. Auf der Vorderseite erkennt man eine mäandernde Leiterbahnschleife, an deren Beginn sich eine Kontaktstelle zur Signaleinspeisung befindet. Auf der Rückseite befindet sich eine SMA-Platinenbuchse zur Kontaktierung der Antenne sowie eine rechteckige Metallstruktur, die nicht mit den anderen Strukturen verbunden ist. Der Innenkontakt der Buchse geht durch die Platine hindurch und ist fest mit der Kontaktstelle auf der Vorderseite verlötet. Der Außenleiter der Buchse ist mit einer hexagonalen Kontaktstelle auf der Rückseite verlötet. Die rechteckige Metallstruktur auf der Rückseite trägt hauptsächlich zur Impedanzanpassung bei der gewünschten Frequenz bei und ähnelt in ihrer Funktion daher einem Stub bzw. einer Stichleitung (vgl. Ref. [144]). Das nicht leitende Trägermaterial der Leiterplatten ist ein hauptsächlich aus Glasfasergewebe bestehender Verbundwerkstoff, der im Allgemeinen mit FR4 (*engl.* **F**lame **R**etardent) bezeichnet wird.

Die Simulationen der verschiedenen Designs wurden mit dem Programm COMSOL durchgeführt. Eine genaue Anleitung zum Umgang mit dem Programm findet

⁶Als Vorbild dafür können heutige WLAN (*engl.* **W**ireless **L**ocal **A**rea **N**etwork)- oder Bluetooth-Antennen von mobilen Endgeräten wie Tablets oder Smartphones dienen. Diese verwenden häufig den Frequenzbereich um etwa 2.4GHz zur Kommunikation. Da der vorhandene Platz im Endgerät ebenso wie dessen Batteriekapazität begrenzt ist, gelten für das Design der Antennen vergleichbare Anforderungen wie für eine Antenne zur Manipulation von NV-Zentren in kryogener Umgebung. Die leichte Integrierbarkeit von Leiterplatten-basierten Antennen in die vorhandene Platinenstruktur in den Geräten machen diese zum idealen Kandidaten für das Antennendesign.

4.2 Antennendesign, Simulation und Netzwerkanalyse

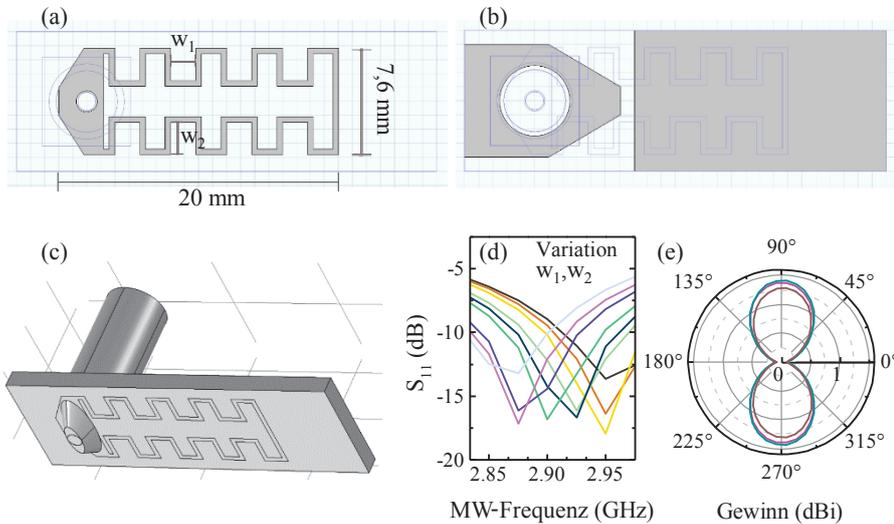


Bild 4.1: (a) Technische Zeichnung der Antennenvorderseite. Die gesamte Leiterplatte hat Abmessungen von $30\text{ mm} \times 10\text{ mm}$. Die Leiterbahnstruktur ist in grau dargestellt. (b) Technische Zeichnung der Antennenrückseite. (c) Dreidimensionale Ansicht des kompletten Antennenmodells. Auf der Rückseite ist die SMA-Buchse mitberücksichtigt. (d) Spektrum der simulierten S_{11} -Werte für verschiedene Werte der Abstände w_1, w_2 aus Teilbild (a) in der Mäanderstruktur. (e) Simulation der räumlichen Verteilung des Antennengewinns im Fernfeld bei einer bestimmten w_1, w_2 -Kombination für drei unterschiedliche Frequenzen 2.8 GHz, 2.87 GHz und 3.0 GHz

sich in Ref. [145] und [146]. Als Optimierungsparameter wurden die Länge und Tiefe der Mäander sowie die Länge des Metallrechtecks auf der Rückseite variiert und für jeden Parametersatz die S_{11} -Parameter im Frequenzbereich zwischen 2.5 GHz - 3.5 GHz berechnet. Bild 4.1 (d) zeigt stellvertretend die Ergebnisse bei Variation von zwei der angesprochenen Parameter. Auf diese Weise konnten Designformen gefunden werden, die im Frequenzbereich bei etwa 2.9 GHz Werte für S_{11} von $> -15\text{ dB}$ zeigen.

Das Programm gibt auch Aufschluss über die Abstrahlcharakteristik der Antenne. In Bild 4.1 (e) erkennt man die Richtwirkung der Antenne. Allerdings ist die Angabe von Zahlenwerten für den Antennengewinn G in unserem Beispiel nur von beschränkter Aussagekraft. Ein typisches Fernfeldverhalten einer Dipolantenne bei einer Frequenz von $\nu = 2.87\text{ GHz}$ ($\lambda = 10.5\text{ cm}$) bildet sich erst auf Längenskalen aus, welche deutlich größer als der Abstand zwischen Antenne und Diamant im Experiment sind.

Das Spektrum der S_{11} -Werte kann an der realen Antenne (Bild 4.2 (a)) experimentell mit einem Netzwerkanalysator (NWA) überprüft werden. Bild 4.2 (b) zeigt schematisch den Messaufbau. Das Prinzip des NWA besteht darin, ein in Frequenz, Amplitude und Phase bekanntes Signal auf eine zu untersuchende Probe zu senden. Die Probe kann an beiden Ausgängen des NWA (Port 1 und Port 2) angeschlossen werden.

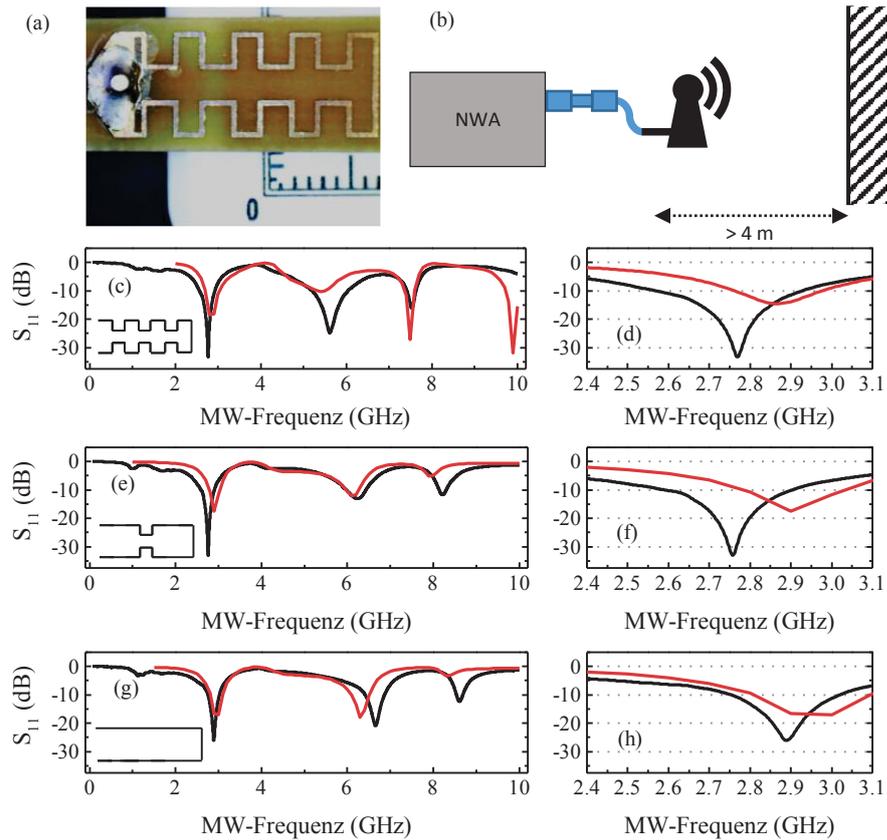


Bild 4.2: (a) Bild der realen Antennenvorderseite mit Maßstab (Maßeinheit: mm). (b) Schema des NWA-Messaufbaus. Da S_{11} -Messungen an Antennen massiv von reflektierenden Oberflächen gestört werden, wurde während der Messung versucht, soviel Abstand wie möglich von Raumwänden und sonstigen Oberflächen zu halten. (c)-(h) Vergleich simulierter (rot) und gemessener (schwarz) Spektren der S_{11} -Parameter von verschiedenen Antennendesigns. Jeweils links: Gesamter simulierter und gemessener Frequenzbereich. Das Design der zugehörigen Antenne ist jeweils innerhalb der Grafik angedeutet. Rechts: Ergebnisse im Bereich der Nullfeld-Resonanz der NV-Zentren

4.3 Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen

Vor jeder Messreihe ist eine Kalibrierung dringend notwendig, um die Dämpfung und Phasenverschiebung der im Versuchsaufbau verwendeten Hilfsmittel (in unserem Fall Kabel und Adapter) zu bestimmen.

Da die Ausgänge gleichzeitig als Eingänge verwendet werden, können die Amplitude und Phase sowohl des reflektierten als auch, soweit es die untersuchte Probe zulässt, des transmittierten Signals gemessen werden. Ref. [147] liefert eine detaillierte Beschreibung über die Funktionen und Anwendungsgebiete von Netzwerkanalysatoren.

Bild 4.2 (c) - (h) zeigt einen Vergleich von simulierten und experimentell bestimmten S_{11} -Werten im Bereich bis 10 GHz für verschiedene Designformen. Man erkennt deutlich, wie alle wesentlichen Resonanzen der Spektren übereinstimmen, wenn auch teilweise leicht gegeneinander verschoben. Ähnliche Verschiebungen zwischen Simulation und Experiment von Antennen mit weniger Mäanderschleifen und daher simpleren Design deuten auf einen systematischen Fehler hin, der vermutlich durch die unterschiedlichen Randbedingungen verursacht wird. Während in der Simulation eine perfekt absorbierende Umgebung angenommen wird, lässt sich diese Situation in den uns zur Verfügung stehenden Laboren nicht herstellen (siehe hierzu Ref. [148]).

An dieser Stelle soll angemerkt werden, dass die Bereiche, in denen S_{11} -Werte von > -10 dB in der Simulation und im Experiment erreicht werden, sich stark überlappen. Dies bedeutet, dass mehr als 90% des Signals im gewünschten Frequenzbereich in die Antenne gelangen, weshalb die leichten Verschiebungen der Minima vernachlässigbar erscheinen.

4.3 Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen

Während in den meisten Studien der Mikrowellenemitter zur gezielten Manipulation eines oder mehrerer NV-Zentren genutzt wird, kann umgekehrt auch die Antwort eines NV-Ensembles verwendet werden, um eine Antenne zu charakterisieren. In diesem Kapitel wird durch orts aufgelöstes Vermessen des optisch detektierten Magnetfeldresonanz-Signals (ODMR-Signal) im in Appendix A.1 beschriebenen Versuchsaufbau die Feldverteilung des Mikrowellenfeldes der Antenne bestimmt, wobei diese mit einer Leistung von etwa 35 dBm gespeist wird.

Die prinzipielle Eignung der Antenne für das Arbeiten mit NV-Zentren zeigt sich in Bild 4.3. Die Intensität der von der Antenne emittierten Mikrowelle ist ausreichend, um ein deutliches cw-ODMR-Signal im Spektralbereich zwischen 2.7 GHz und 3 GHz zu erzeugen. Der Abstand zwischen Antenne und Beobachtungsort im Diamant beträgt dabei etwa 4 mm.

Führt man den Diamanten näher an die Antenne, erwartet man eine klare Abhängigkeit der Stärke des ODMR-Signals von der relativen Position zur Antenne. Je näher

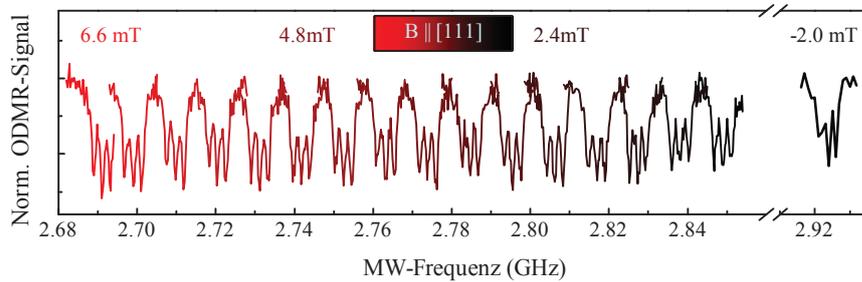


Bild 4.3: cw-ODMR-Signal der [111]-orientierten NV-Zentren im externen Magnetfeld. Jeder Farbton der Farbskala von rot (höchstes Magnetfeld in „+“-Richtung) bis schwarz (höchstes Magnetfeld in „-“-Richtung) entspricht einer unterschiedlichen Feldstärke. Die Feldstärke wurde in Schritten von etwa 0.4 mT variiert, mit Ausnahme des Schrittes zwischen zweithöchster (6.4 mT) und höchster (6.6 mT) Feldstärke. Ausgewählte Magnetfeldwerte sind im entsprechenden Farbton an der jeweiligen Messung angegeben. Man erkennt bei jeder Messung die Aufspaltungen, welche durch die Hyperfeinwechselwirkung mit dem Kernspin des Stickstoffions entstehen

der Beobachtungspunkt an der Leiterbahn auf der Platine liegt, umso stärker muss das Mikrowellenfeld sein. In der Simulation in Bild 4.4 erkennt man deutlich, wie in einer Höhe von etwa 0.2 mm oberhalb der Antenne die Intensitätsverteilung klar dem Verlauf der Mäanderstruktur folgt.

Bringt man den Diamanten in den entsprechenden Abstand zur Oberfläche der Antenne und betrachtet man den lokalen ODMR-Kontrast bei 2.87 GHz entlang der zwei Raumrichtungen parallel zur Oberfläche, erkennt man eine starke Übereinstimmung zwischen den qualitativen Verläufen von Simulation und Experiment. Die gemessene Feldverteilung in Bild 4.4 wirkt allerdings erheblich glatter als die simulierte Verteilung, in der teilweise sehr abrupte Übergänge von Bereichen starker Intensität zu geringer Intensität erkennbar sind.

Zur Erklärung der Herkunft dieser abrupten Übergänge sind zwei Möglichkeiten denkbar. Einerseits können die starken Variationen ein direktes Ergebnis der Simulation sein, und die Feldverteilung innerhalb der Ebene wird tatsächlich so berechnet. Andererseits ist die Anzahl der Stützstellen, auf denen die Simulation arbeitet, nicht unendlich. Daher ist die Dichte an zur Verfügung stehenden Datenpunkte exakt entlang einer vorgegebener Schnittebene durch den dreidimensionalen Raum begrenzt. Als Folge werden zwangsläufig Daten von Stützstellen verwendet, die nicht exakt innerhalb der Schnittebene liegen. Liegen diese Stützstellen so weit von der vorgegebene Ebene entfernt, dass das Feld dort bereits stark andere Werte angenommen hat, täuscht der entsprechende Datensatz eine lokale Variation der Feldstärke vor. In diesem Fall können die experimentellen Daten die tatsächliche Feldverteilung deutlich besser abbilden.

Beim Vergleich der Signalstärke des ODMR-Signals mit der Intensitätsverteilung

4.3 Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen

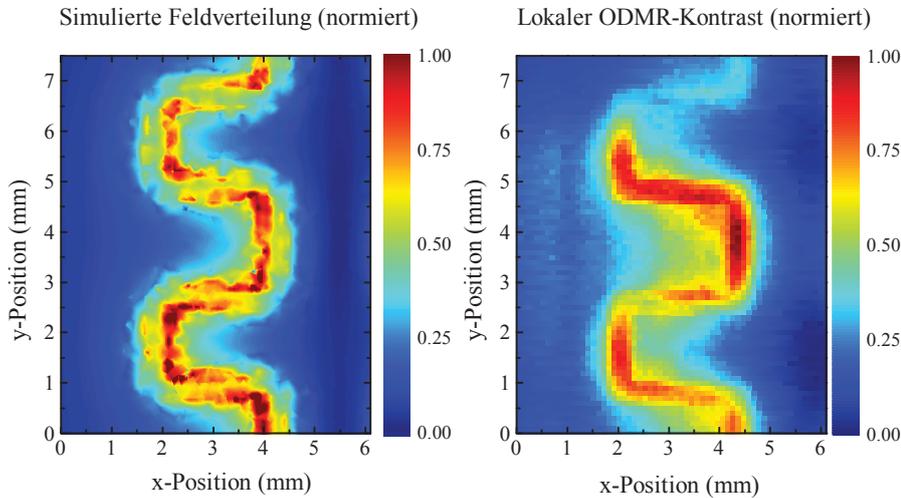


Bild 4.4: Vergleich zwischen der simulierten Magnetfeldintensität des Mikrowellenfeldes und dem gemessenen ODMR-Kontrast (bei $\nu = 2.87$ GHz) der NV-Zentren im Diamant im Abstand von etwa 0.2 mm parallel zur Antennenvorderseite

des MW-Feldes ist zu beachten, dass das ODMR-Signal nicht linear mit der Feldstärke wächst. Wie bereits in Bild 2.3 in Kapitel 2 demonstriert, lässt sich der Zusammenhang durch eine Sättigungskurve beschreiben. Das Signal ist daher in den Bildern 4.4 - 4.7 auf diese Sättigungskurve normiert.

Die Vergleiche von Simulation und Messdaten wird noch deutlich besser, wenn man die Beobachtungsebene etwas weiter von der Antennenoberfläche entfernt wählt. Dort sind die lokalen Intensitätsgradienten weniger stark, sodass in der Simulation die numerischen Artefakte an Bedeutung verlieren.

Im Abstand von etwa 0.7 mm (Bild 4.5) sieht man wie sich das Feld nach wie vor entlang der Mäanderstruktur windet. Allerdings erkennt man, wie das Feld auch in Bereichen stark wird, die sich nicht direkt oberhalb der Leiterbahn befinden.

Dieser Trend verstärkt sich bei noch größeren Abständen zwischen Antennenvorderseite und Beobachtungsebene. Bei einem Abstand von etwa 1.1 mm haben sich bereits nicht mehr zusammenhängende Intensitätsmaxima gebildet, sodass sich die mäandernde Struktur nicht mehr erkennen lässt. Diese Maxima bleiben bis in einen Abstand von etwa 2 mm bis 3 mm bestehen. Darüber hinaus stellt sich eine vergleichsweise homogene Feldverteilung ein.

Dieses Verhalten wird auch von einem Schnitt entlang einer Ebene senkrecht zur Antennenoberfläche bestätigt. Gleichzeitig unterstreichen die experimentellen Daten in Bild 4.7 auch nochmals die Eigenschaft der NV-Zentren, auch facettenreiche Abstrahlungscharakteristika von Antennen in hoher Qualität nachzuweisen oder zu überprüfen, ohne dabei auf numerische Simulationen angewiesen zu sein.

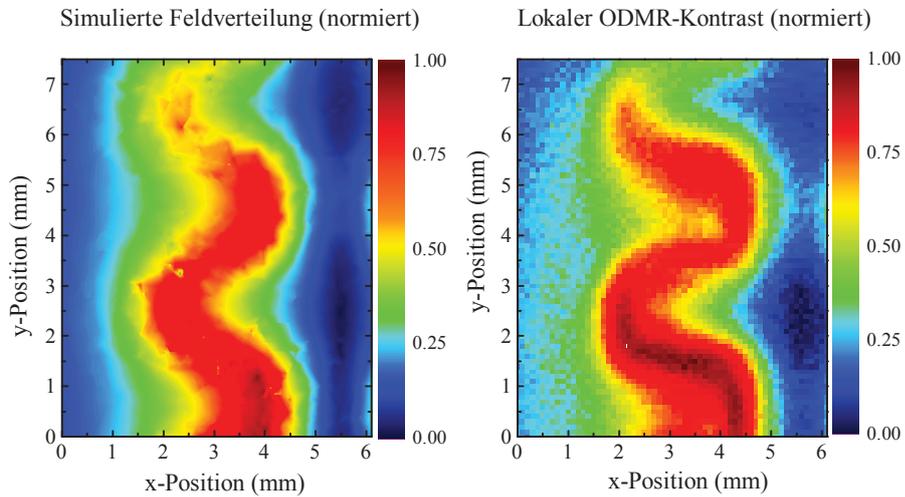


Bild 4.5: Vergleich zwischen der simulierten Magnetfeldintensität des Mikrowellenfeldes und dem gemessenen ODMR-Kontrast (bei $\nu = 2.87$ GHz) der NV-Zentren im Diamant im Abstand von etwa 0.7 mm parallel zur Antennenvorderseite

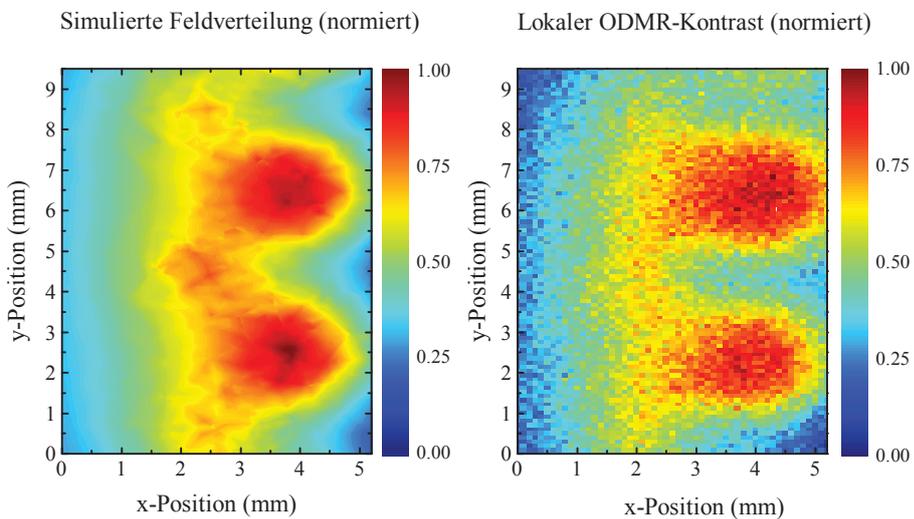


Bild 4.6: Vergleich zwischen der simulierten Magnetfeldintensität des Mikrowellenfeldes und dem gemessenen ODMR-Kontrast (bei $\nu = 2.87$ GHz) der NV-Zentren im Diamant im Abstand von etwa 1.1 mm parallel zur Antennenvorderseite

4.3 Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen

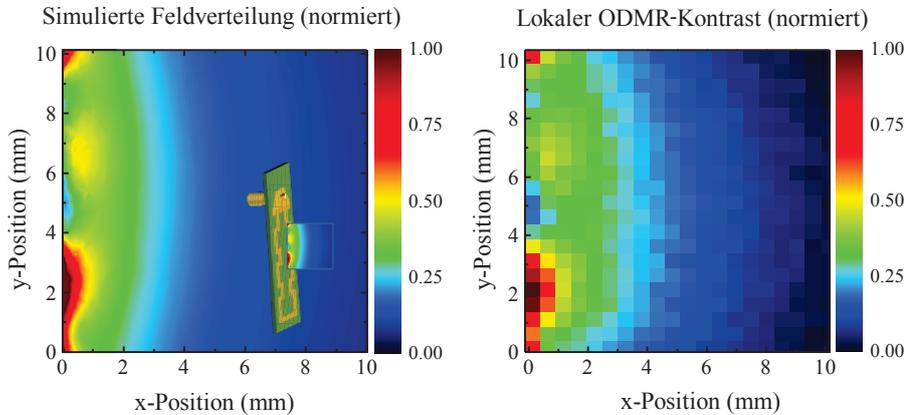


Bild 4.7: Vergleich zwischen der simulierten Magnetfeldintensität des Mikrowellenfeldes und dem gemessenen ODMR-Kontrast (bei $\nu = 2.87$ GHz) der NV-Zentren in einer Ebene senkrecht zur Antennenvorderseite. Der Einschub im linken Teilbild gibt schematisch die Lage der Messebene relativ zur Antennenvorderseite an

Zusammenfassend lässt sich daher feststellen, dass diese Antenne für den Einsatz in der orts aufgelösten, NV-basierten Magnetometrie sehr gut geeignet ist. Die homogene Feldverteilung im Abstand von etwa 4 mm sorgt dafür, dass genügend Raum für die Manipulation des Sensors und der Probe vorhanden ist, ohne dass sich dabei die Feldstärke der Mikrowelle und damit die Antwort des Sensors dramatisch ändert.

In den Bildern 4.4 bis 4.7 ist als Messgröße jeweils das cw-ODMR-Signal im Nullfeld verwendet worden. Dabei stellen die Bilder nur einen qualitativen Vergleich zwischen simulierter Feldstärke und dem normierten Messsignal dar. Eine direkte Zuordnung von einem bestimmten cw-ODMR-Signalwert zu einer konkreten Feldstärke ist extrem herausfordernd. Der Grund dafür ist, dass eine Sättigungskurve für den Signalwert in Abhängigkeit der angelegten MW-Leistung zwar ausgemessen werden kann, die tatsächliche MW-Leistung am Beobachtungsort aber nur schwer zu messen ist.

Eine Messung der lokalen Rabi-Frequenz Ω_{Rabi} könnte gemäß Gleichung 2.21 Aufschluss über die Amplituden der Komponenten des Mikrowellenfeldes geben. Zur Messung ist allerdings ein externes Magnetfeld essentiell, welches entsprechend die notwendige MW-Frequenz verschiebt. Auch ist das maximal erreichbare cw-ODMR-Signal erheblich kleiner, da nur ein Anteil der vorhandenen NV-Zentren zum Signal beitragen, was das Signal-Rausch-Verhältnis einer Messung wie in Bild 4.4 deutlich größer und die Messzeit daher erheblich länger werden lässt.

Prinzipiell bildet das Ausmessen der lokalen Rabi-Frequenz aber eine Möglichkeit zur direkten Feldamplitudenbestimmung. Durch Variation des externen Magnetfeldes kann so sogar der S_{11} -Wert der Antenne experimentell bestimmt werden.

Bei einem späteren Einsatz der Antenne im kryogenen Umfeld ist es allerdings möglich, dass die Antenne ein anderes Verhalten als in den bislang durchgeführten

Experimenten zeigt. Der Grund dafür ist die metallische Umgebung der Antenne im Kryostaten. Bei den Messungen von Bild 4.2 konnte bereits festgestellt werden, dass sich die Spektren der S_{11} -Werte extrem verändern, wenn sich eine Metallfläche in der Nähe befindet und als Reflektor wirken kann. Dies ist in noch stärkerem Maß im Kryostaten zu erwarten, in dem die Antenne von Edelstahl- oder Messingwänden umgeben sein wird.

Diese metallische Einhausung muss sich allerdings nicht unbedingt nachteilig auf die Eignung der Antenne auswirken. Sie kann ebenso als Resonator genutzt werden. In Bild 4.8 (a) sind Spektren der Antenne gezeigt, nachdem sie von einer Metallbox (Abmessungen ca. $30\text{ cm} \times 30\text{ cm} \times 15\text{ cm}$) ummantelt wurde. Die einzelnen Spektren entsprechen unterschiedlichen, willkürlich gewählten Positionen der Antenne. Man erkennt eine Vielzahl von extrem schmalen Resonanzen, die mutmaßlich den verschiedenen Resonatormoden der Metallbox entsprechen. Dabei übersteigen die S_{11} -Werte die Werte der freien Antenne teilweise deutlich.

Bild 4.8 (b) zeigt einen Vergleich zwischen den S_{11} -Werten innerhalb der Metallbox mit denen der freien Antenne über einen breiten Spektralbereich. Das Spektrum der eingeschlossenen Antenne folgt trotz der zerklüfteten Resonanzstruktur dem der freien Antenne. Dieser Zusammenhang macht deutlich, wie die prinzipiellen Überlegungen, die zu der Entwicklung der Antenne führten, auch in der Situation einer metallischen Ummantelung der Antenne wie im Kryostaten weiterhin gültig sind.

Damit erscheint es extrem günstig, zur Manipulation von NV-Zentren innerhalb eines Kryostaten ein externes Magnetfeld anzulegen, sodass die ODMR-Resonanzfrequenz der NV-Zentren mit einer der Resonatormoden des Kryostaten zusammenfällt. In dieser Situation lassen sich gleiche Intensitäten des MW-Feldes bei niedrigeren Eingangsleistungen erwarten, als in den vorangegangenen Experimenten festgestellt wurden. Dadurch kann die eingebrachte Wärmeleistung in den Kryostaten weiter reduziert werden.

Die exakte Modenverteilung im Kryostaten ist aufgrund der komplexen Geometrie des Probenraums mit den zur Verfügung stehenden Rechnern nicht zuverlässig zu simulieren. Daher kann erst eine direkte Messung des Frequenzspektrums durch einen NWA Aufschluss über die Resonanzfrequenzen des Probenraums geben.

Realistischerweise werden die Abmessungen des Probenraums immer erheblich kleiner sein, als jene der für die Messungen aus Bild 4.8 verwendete Metallbox. Dieses verringerte Volumen reduziert die Anzahl der erlaubten Moden des elektromagnetischen Feldes.

Der Effekt wird besonders dramatisch im Bereich der niedrigen Frequenzen sein, wo die Abmessungen der metallischen Ummantelung eine untere Grenze der Frequenz vorgeben, unterhalb derer keine Wellenausbreitung stattfinden kann (*engl.* cut-off frequency). Für eine Metallbox mit den oben genannten Abmessungen liegt diese Grenze bei etwa 700 MHz, wohingegen die cut-off-Frequenz f_c eines zylindrischen Hohlleiters mit dem Innenradius r zu

4.3 Antennencharakterisierung durch Lumineszenzmessungen

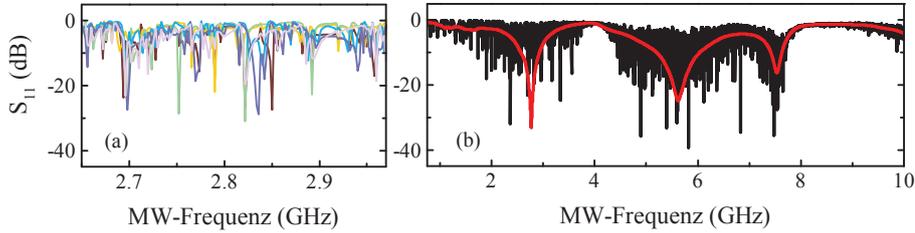


Bild 4.8: (a) Spektrum der gemessenen S_{11} -Werte der Antenne nahe dem Frequenzwert der Nullfeldresonanz der NV-Zentren für unterschiedliche, willkürliche Positionen und Orientierungen innerhalb einer Metallbox. Man erkennt eine Vielzahl von scharfen Resonanzen, die nicht reproduzierbar sind. (b) Vergleich zwischen gemessenem S_{11} -Spektrum in der Metallbox (schwarz) und simuliertem S_{11} -Spektrum der freien Antenne (rot) über einen weiten Spektralbereich. Trotz der starken Abweichungen folgt das Abstrahlverhalten der ummantelten Antenne dem Spektrum der freien Antenne

$$f_c = \frac{1.8412c}{2\pi r} \quad (4.4)$$

abgeschätzt werden kann, wobei c für die Lichtgeschwindigkeit im Resonator steht. Daraus folgt, dass in einem zylindrischen Hohlleiter mit einem Durchmesser von weniger als $d = 6.12\text{ cm}$ die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen stark unterdrückt sein wird, wenn deren Frequenz der Nullfeldresonanz der NV-Zentren bei $\approx 2.87\text{ GHz}$ entspricht. Diese Überlegungen müssen beim Entwurf eines Kryostaten, in dem später ODMR-Messungen an Diamant durchgeführt werden, berücksichtigt werden. Der Probenraum des innerhalb dieser Arbeit geplanten Kryostaten verfügt daher über einen Durchmesser von $d = 6.35\text{ cm}$ (vgl. Appendix A.2 und Bild A.5).

Kapitel 5

Nanostrukturierung von Diamanten

Die bisherigen Messungen zeigen, wie sich die Richtung und der Betrag eines homogenen, externen Magnetfelds aus den ODMR-Spektren der NV-Zentren im Diamant gewinnen lassen. Allerdings zeigen sich auch die Schwächen des Ansatzes: Variiert das Magnetfeld auf einer Längenskala vergleichbar zur optischen Auflösung, wirken auf verschiedene NV-Zentren innerhalb des Beobachtungsvolumens lokal unterschiedliche Magnetfelder. Das gemessene ODMR-Spektrum wird zunehmend uneindeutig, und die optische Auflösung des verwendeten Mikroskopobjektivs gibt so die maximal erreichbare räumliche Auflösung der Magnetfeldmessung vor. Als Ausweg bieten sich zwei unterschiedliche Lösungsansätze an.

Auf der einen Seite gibt es mehrere Methoden, die optische Auflösung im Experiment zu verbessern (Immersionlinsen [149], strukturierte Linsen [150–152]) oder sie zu überwinden (STED [153, 154], CSD [155]) und dadurch das Beobachtungsvolumen zu verkleinern. Alternativ ist es möglich, die räumliche Verteilung der NV-Zentren so einzuschränken, dass diese nicht mehr homogen im gesamten Beobachtungsvolumen verteilt, sondern räumlich eingeschnürt sind. Das Resultat beider Methoden ist eine deutlich verbesserte räumliche Auflösung während der Magnetfeldmessung.

Innerhalb dieser Arbeit fiel die Wahl auf die zweite Vorgehensweise. Eine häufig anzutreffende Umsetzung dieses Ansatzes ist das Arbeiten mit Nanodiamanten [156–158]. Der Vorteil von Nanodiamanten ist ihre hohe Verfügbarkeit, allerdings wirken sich Eigenschaften wie Handhabung und Lumineszenzintensität im Experiment stark negativ aus. Im Folgenden wird daher beschrieben, wie sich diese Probleme umgehen lassen, indem man aus einem makroskopischen Diamant höchster Reinheit durch gezielte Stickstoffimplantation und Nanostrukturierung des Diamanten einen Sensor entwickelt, der räumliche Auflösungen der Magnetfeldmessung erlaubt, die nicht durch die verwendeten optischen Elemente beschränkt sind. Das Ziel ist dabei ein dünner Diamantcantilever, in dessen Spitze NV-Zentren platziert sind. Diese Spitze soll später in einer Rastersondenmessung gleichzeitig Positions- und Magnetfeldsensor sein, womit der Idee von Maletinsky *et al.* [44] gefolgt wird.

Als Ausgangsmaterial für diesen Prozess dient (100)-orientiertes Diamantmaterial der Fa. *element six* in der höchsten verfügbaren Reinheit, welche als *electronic*

grade spezifiziert ist. Der Unterschied zu den in den Kapiteln 2 bis 4 verwendeten Diamanten liegt in ihrer intrinsischen Stickstoffkonzentration, die vom Hersteller mit $[N]_S^0 \leq 5 \text{ ppb}$ angegeben wird. Diese hohe Reinheit des Kristalls führt dazu, dass vor der weiteren Verarbeitung des Materials eine vernachlässigbare Anzahl von NV-Zentren innerhalb des Beobachtungsvolumens verteilt ist.⁷ Eine ähnliche Strukturierung von andersorientiertem Diamanten ist ebenfalls prinzipiell möglich [159], aber im Moment noch nicht zielführend, da diese bislang nicht in vergleichbarer Reinheit am Markt verfügbar sind.

5.1 Stickstoffimplantation

Der zur Bildung von NV-Zentren notwendige Stickstoff wird über eine im Halbleitersystem standardmäßig verwendete Ionenimplantation in den Kristall eingebracht. Die Abhängigkeit der Ioneneindringtiefe von ihrer Geschwindigkeit erlaubt dabei eine kontrollierte vertikale Einschnürung der Stickstoffatome.

Die Ionenimplantation stellt eine der wichtigsten Dotierungstechniken für Halbleitersysteme dar, insbesondere in Fällen, in denen eine Dotierung während des Kristallwachstums aufgrund stark voneinander abweichender Phasendiagramme von Wirtsmaterial und Dopant sehr schwierig ist. Dadurch kann trotz dieser Einschränkung eine gezielte Dotierung reproduzierbar und homogen vorgenommen werden.

Die Implantation am Diamanten wurde extern von einem kommerziellen Anbieter (Fa. *DTF Thin Films GmbH*) für entsprechende Aufgaben durchgeführt. Bei der Implantation von Stickstoff in den Diamanten wird in ein Hochvakuumssystem zunächst ein Stickstoffgas eingelassen, welches direkt über hohe elektrische Felder ionisiert wird. Über eine Kombination von elektrischen und magnetischen Feldern werden die Ionen aus der Ionisationskammer abgesaugt, zu einem Strahl gebündelt, nach ihrer Masse selektiert, auf die zur Implantation geforderte Energie beschleunigt und schließlich auf die zu dotierende Probe geleitet [160, 161].

Die eingestrahelten Ionen können im Kristall entweder durch Wechselwirkungen mit den Elektronen oder mit den Atomrümpfen des Kristalls abgebremst werden. Je mehr kinetische Energie die Ionen beim Eindringen in den Kristall besitzen, umso tiefer können sie in den Kristall eindringen. Da die Geschwindigkeit durch die Spannung in der Beschleunigungsstrecke der Implantationsanlage bestimmt wird, lässt sich durch eine Wahl der geeigneten Spannung die mittlere Eindringtiefe der Ionen kontrollieren.

Der genaue Zusammenhang zwischen Geschwindigkeit und mittlerer Eindringtiefe kann durch die Lindhard-Scharff-Schiott-Theorie grob beschrieben werden [162]. Tatsächlich ist es jedoch üblich, bei der Berechnung der benötigten experimentellen

⁷Da sich während der Strukturierungsprozesse zu dicke Diamantproben als unpraktikabel erwiesen haben, wurde beim Einkauf des Materials Wert auf möglichst dünne Proben gelegt. Daher wurden die Proben entweder noch von der Fa. *Medidia GmbH* geschliffen oder direkt von der Fa. *Diamond Delaware Knives Inc.* erworben, sodass das Ausgangsmaterial in Dicken von ca. 65 μm bzw. 50 μm vorlag.

Parameter auf eine Gruppe von Computerprogrammen zurückzugreifen, die unter dem Namen SRIM (*engl.* **S**topping and **R**ange of **I**ons in **M**atter) zusammengefasst werden.⁸ Diese auf einer Monte-Carlo-Simulation basierenden Programme können für ein gegebenes Wirtsmaterial, Ionentyp und Beschleunigungsspannung eine Vielzahl von Vorhersagen für die Implantation machen, wie etwa statistische Verteilungen der Ionen, Energieverlusten für die verschiedenen Mechanismen, etc. [163].

In der vorliegenden Situation sind jedoch allein Informationen über die mittleren Eindringtiefen von Stickstoff in den Diamanten von Interesse. Bei der Wahl der richtigen Implantierungstiefe gilt es zwischen zwei Trends abzuwägen: Je näher die NV-Zentren an der Diamantoberfläche erzeugt werden, umso enger können sie später an die zu untersuchende Struktur angenähert werden. Dem stehen Nachteile von NV-Zentren nahe an der Oberfläche wie eine signifikante Verbreiterung der ODMR-Spektren [164] sowie eine Verlängerung der Lebensdauer und dadurch ein verringertes Lumineszenzsignal gegenüber. In Bild 5.1 (a) sind die Ergebnisse einer eigens durchgeführten SRIM-Simulation für die Implantation von ^{14}N in Diamant dargestellt. Aufgrund dieser Überlegungen wurde eine Beschleunigungsspannung von 5 keV gewählt.

Da die Wechselwirkung mit den Atomrümpfen deutlich stärker als die mit den Elektronen des Kristalls ist, werden die implantierten Ionen stark unterschiedlich abgebremst, wenn sie auf einen Atomrumpf treffen oder sich in den Zwischenräumen bewegen. Da bei der Implantation entlang von (100)-orientierten Oberflächen die Atomrümpfe der obersten Schicht alle tieferen Atomrümpfe verdecken, treffen die implantierten Ionen entweder direkt auf die obersten Atomrümpfe oder können sehr tief in den Kristall eindringen, bis sie auf den ersten Atomrumpf treffen. Dadurch können unerwünschte, stark unterschiedliche Eindringtiefen von Ionen gleicher kinetischer Energie erreicht werden, was man als Gitterführungseffekt bezeichnet.

Zur Vermeidung von eventuellen Gitterführungseffekten wird die Probe daher während der Implantation so gekippt, dass die Oberflächennormale mit dem einfallenden Ionenstrahl einen Winkel von etwa 7° einschließt. An dieser Stelle soll für eventuelle zukünftige Implantationen von (111)-Diamanten darauf hingewiesen werden, dass diese um einen etwas stärkeren Winkel gekippt werden sollten (siehe z.B. Ref. [160]). Daher ist die Kristallorientierung eine zwingend notwendige Information, die dem externen Anbieter mitgeteilt werden muss.

Bei der Implantation können durch Stöße zwischen den hochenergetischen Ionen mit den Gitteratomen Strahlungsschäden wie Fehlstellen entstehen. Diese sind häufig ein unerwünschter Effekt, da die zusätzlichen Gitterdefekte Materialeigenschaften wie z. B. die Leitfähigkeit stark beeinflussen. In unserem Fall können die entstanden Fehlstellen jedoch direkt zur Bildung von NV-Zentren genutzt werden. Dadurch wird eine zusätzliche Bestrahlung mit Elektronen zur Erzeugung von Fehlstellen überflüs-

⁸Siehe auch www.srim.org

5.1 Stickstoffimplantation

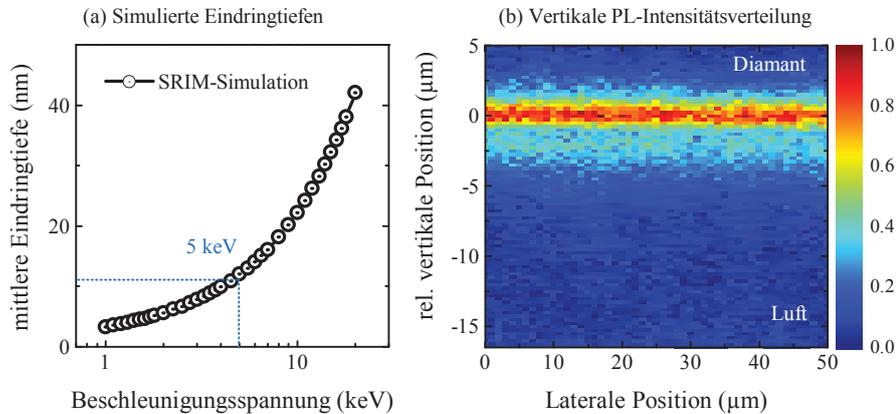


Bild 5.1: (a) Übersicht über Simulationsergebnisse für die unterschiedlichen mittleren Eindringtiefen bei Variation der Beschleunigungsspannung. Die Beschleunigungsspannung, die für die Implantation gewählt wurde, ist in blau markiert und angegeben. (b) Laterale PL-(Photolumineszenz-) Intensitätsprofile für unterschiedliche Abstände zwischen Mikroskopobjektiv und Probenoberfläche nach der Implantation. Die Werte der Y-Achse entsprechen der Position des Probenträgers und nicht der Fokusebene, da diese aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes von Luft und Diamant nicht identisch sind. Der Nullpunkt dieser Achse entspricht der Situation, wenn die Beobachtungsebene und die Probenoberfläche zusammenfallen. Bei negativen Werten liegt die Beobachtungsebene innerhalb des Diamanten, bei positiven vor dem Diamanten

sig [165].

Damit sich die nun im Kristall vorhandenen Stickstoffatome mit den Fehlstellen zu den gewünschten NV-Zentren verbinden, wird an den Proben ein Ausheizen bei etwa 800 °C durchgeführt. Die hohen Temperaturen erlauben es den Kohlenstofffehlstellen mobil zu werden [74], sodass diese sich durch den Kristall bewegen können, um entweder an der Kristalloberfläche zu verschwinden oder sich mit einem Stickstoffatom zu einem NV-Zentrum zu verbinden.

Da Diamant keine stabile Kohlenstoffmodifikation darstellt, ist es unter Umständen möglich, dass an der Oberfläche des Diamanten eine Graphitisierung stattfindet. Die hohe Aktivierungsenergie sorgt jedoch dafür, dass dieser Phasenübergang bei Normaldruck bis hin zu hohen Temperaturen $T > 2000$ K stark unterdrückt ist. Allerdings können Übergangsmetalle als Katalysator wirken und daher bereits bei erheblich niedrigeren Temperaturen ($T \approx 700$ °C) eine Graphitisierung der Oberfläche ermöglichen [166–168]. Auch der hohe Energieeintrag während der Ionenimplantation kann an der Oberfläche zu einer sp^2 -Hybridisierung führen [169]. Da auch Sauerstoff die Graphitisierung beschleunigt [170] und zusätzlich bei hohen Temperaturen eine Zersetzung der Oberfläche wegen der Oxidation zu Kohlenstoffmonoxid oder Kohlenstoffdioxid bewirkt [166, 171], wird das Ausheizen unter UHV-Bedingungen durch-

geführt und die Oberfläche des Diamanten vorher im Säurebad gereinigt [172, 173].

Alle in diesem Kapitel diskutierten Daten wurden an Proben genommen, die bei einer ^{14}N -Strahlungsdosis von $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ implantiert wurden. Nach dem abschließenden Ausheizen erwartet man für diese Dosis die Bildung von etwa 1000 NV-Zentren pro cm^2 [44]. Laut Angaben der Firma, welche die Implantation durchführte, können problemlos ^{14}N -Dosen zwischen $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ und $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ für den Vorgang angefordert werden. Auch eine Implantation mit dem Isotop ^{15}N ist ohne weiteren Aufwand möglich.

Der in Appendix A.1 vorgestellte Versuchsaufbau erlaubt es, eine Abschätzung über den Erfolg der NV-Zentrenezeugung hinsichtlich lateraler und vertikaler Homogenität abzugeben.

In Bild 5.1 (b) ist der Verlauf der Lumineszenzintensität abhängig von der Distanz zwischen Probe und Mikroskopobjektiv gezeigt. Eine Veränderung dieser Distanz führt zu einem Verschieben der Fokusebene relativ zur Diamantoberfläche. Man erkennt nahe der Oberfläche des Diamanten einen sich lateral erstreckenden Bereich, der ein deutlich erhöhtes Lumineszenzsignal liefert. Dieses kann der erhöhten Dichte von NV-Zentren aufgrund der Implantation und des Ausheizens zugeordnet werden. Die vertikale Ausdehnung des Bereichs verstärkter Lumineszenz ist mit etwa $2 \mu\text{m}$ zwar deutlich größer als es die Streuung der Ioneneindringtiefe erwarten lässt, liegt aber im Bereich der axialen optischen Auflösung des Aufbaus.

Die laterale Intensitätsverteilung hingegen ist so homogen, dass keine über das erwartete Rauschen hinausgehenden Abweichungen zu beobachten sind. Dies wird auch in zweidimensionalen PL-Karten entlang der Oberfläche bestätigt (nicht gezeigt).

Eine exaktere Untersuchung ist mit der durch die Versuchsanordnung vorgegebenen optischen Auflösung nicht möglich, die, wie bereits mehrfach erwähnt, auch die räumliche Auflösung einer Magnetfeldmessung mittels der NV-Zentren begrenzt. Wie im nächsten Kapitel demonstriert wird, kann mit einer Nanostrukturierung des Diamanten diese Grenze nach unten getrieben werden.

5.2 Strukturierung von Diamantsäulen und optische Charakterisierung

Die weitere Strukturierung zur Erzeugung der Diamantspitzen setzt sich aus zwei aufeinanderfolgenden Prozeduren zusammen. Zunächst wird aus dem noch $50 \mu\text{m}$ dicken Diamanten eine Membran mit einer Dicke von wenigen μm gefertigt. Dies reduziert die Anzahl von intrinsischen NV-Zentren im verbleibenden Kristall, die bei der Beleuchtung ein Hintergrundsignal zum eigentlichen Messsignal beitragen können. Danach wird in die implantierte Oberfläche eine Anordnung von Nanosäulen (*engl. pillar*) geätzt.

Die Bearbeitung von Diamant ist aufgrund seiner hohen Härte und chemischen

5.2 Strukturierung von Diamantsäulen und optische Charakterisierung

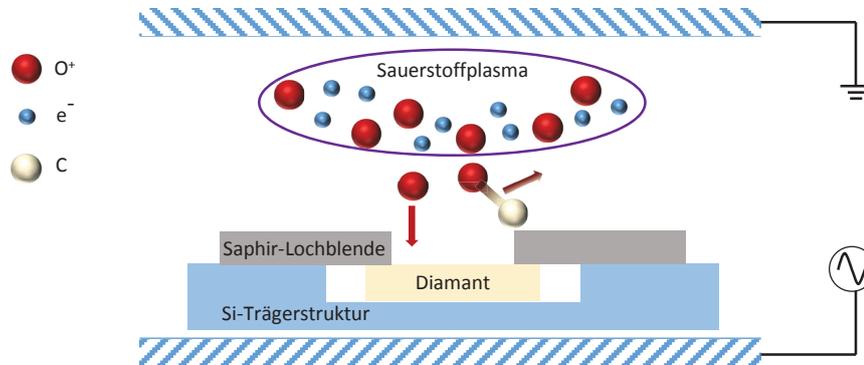


Bild 5.2: Schematische Darstellung der Reaktionskammer in der RIE-Anlage und der Probenhalterung

Trägheit eine große technische Herausforderung. Durch den Einsatz von reaktiven Ionenätztechniken (*engl. Reactive Ion Etching*) in Kombination mit bewährten Lithografieprozessen ist eine Nanostrukturierung von Diamant bis hinunter zu Strukturgrößen von wenigen 10nm dennoch möglich [174–176].

Das reaktive Ionenätzen RIE kann als chemisch assistiertes physikalisches Ätzen aufgefasst werden. Als Ausgangspunkt dafür dient ein hauptsächlich aus Sauerstoff (O_2) bestehendes Gasmisch, welches in eine Reaktionskammer eingelassen wird (vgl. Bild 5.2). Der Sauerstoff wird ionisiert, indem zwischen zwei Elektroden in der Kammer ein starkes Radiofrequenz-Feld (RF-Feld) angelegt wird. Die Elektronen folgen dann dem externen Feld und können auf die Elektroden treffen. Während die Elektronen auf der mit der Masse verbundenen Elektrode einfach aus dem System abgesaugt werden, sorgen sie in der nicht geerdeten Elektrode für eine Aufladung und erzeugen ein statisches Feld in der Kammer.

Dieses statische Feld beschleunigt die Sauerstoffionen, sodass diese mit dem notwendigen Impuls auf den Diamanten treffen. Beim Aufprall werden Kohlenstoffatome aus der Diamantoberfläche herausgebrochen (physikalisches Ätzen). Durch die Verwendung von Sauerstoff können sich die freien Kohlenstoffatome mit den in der Kammer vorhandenen Ionen zu CO - oder CO_2 -Molekülen verbinden (chemische Unterstützung) und diese dann aus der Reaktionskammer abgesaugt werden. Dadurch wird eine Ablagerung der herausgebrochenen Kohlenstoffatome an anderen Stellen in der Kammer oder auf dem Diamanten verhindert.

Der Diamant wird dabei an der implantierten Seite auf einen Siliziumträger geklebt. Über die gesamte Struktur wird eine Lochblende aus Saphir platziert, die den zu ätzenden Bereich der nicht implantierten Oberfläche definiert. Auf diese Weise ist die implantierte Oberfläche des Diamanten hinreichend geschützt.

Die Dauer des Ätzvorgangs kontrolliert die Dicke der Membran. Da der Diamant nur in seiner Mitte geätzt wird, behält er an seinen Seiten die ursprüngliche Dicke von

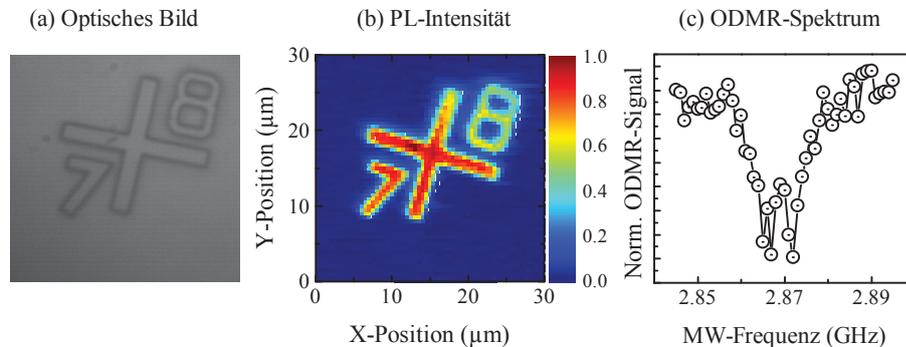


Bild 5.3: (a) Optisches Bild der Koordinatensystemstruktur. (b) PL-Signalintensität im Bereich der Koordinatensystemstruktur. (c) cw-ODMR-Spektrum des PL-Signals im Bereich der Koordinatensystemstruktur

etwa $50\mu\text{m}$ bei, was den weiteren Umgang mit dem Diamanten enorm erleichtert.

Für die anschließende Lithografie der Nanosäulenstruktur wird der Diamant wieder in den Si-Träger geklebt, allerdings diesmal mit der implantierten Oberfläche nach oben zeigend. Darauf wird zunächst eine 5nm -Schicht Titan aufgebracht, und diese wiederum mit einer Schicht elektronenstrahlhärtendem Lack bedeckt.⁹ Die Probe wird so in ein Elektronenstrahlmikroskop (*engl.* Scanning Electron Microscope) eingeschleust. Man beleuchtet die Probe darin mit dem Elektronenstrahl an den Stellen, an denen später die Nanostruktur entstehen soll. Zur besseren Orientierung wird in den Lack neben der Maske für die Nanosäulen auch ein Koordinatensystem und verschiedene Marker geschrieben.

Der nicht ausgehärtete Lack wird danach von der Probenoberfläche gespült und anschließend das freigelegte Titan ebenfalls von der Oberfläche entfernt. Im anschließenden Ätzvorgang in der RIE schützen die verbleibenden Lack-Inseln auf der Oberfläche die darunter liegenden Areale und der Diamant wird nur entlang der freiliegenden Flächen geätzt. Die Ätztiefe im Fall der im weiteren Teil dieses Kapitels verwendeten Probe beträgt etwa $1\mu\text{m}$.

An den großen Hilfsstrukturen kann leicht demonstriert werden, dass die verschiedenen Ätzschritte die verbleibenden NV-Zentren nicht beschädigen. In Bild 5.3 (a) und (b) ist ein Vergleich zwischen dem optischen Bild und der gemessenen PL-Intensität an einer der Hilfsstrukturen gezeigt. Man erkennt deutlich, dass das starke PL-Signal nur in den Bereichen zu detektieren ist, die während des Ätzens unter der Maske verborgen sind. Der starke Intensitätskontrast des PL-Signals zu den geätzten Bereichen zeigt, dass die mittlere Eindringtiefe der Ionen während der Implantation erheblich niedriger als $1\mu\text{m}$ sein muss. Auch das ODMR-Spektrum in Bild 5.3 (c)

⁹Der Grund für die Verwendung der Titan-Schicht besteht einzig darin, dass der Lack nur schlecht direkt auf Diamant haftet. Für die weitere Prozessierung ist die Titan-Schicht irrelevant.

5.2 Strukturierung von Diamantsäulen und optische Charakterisierung

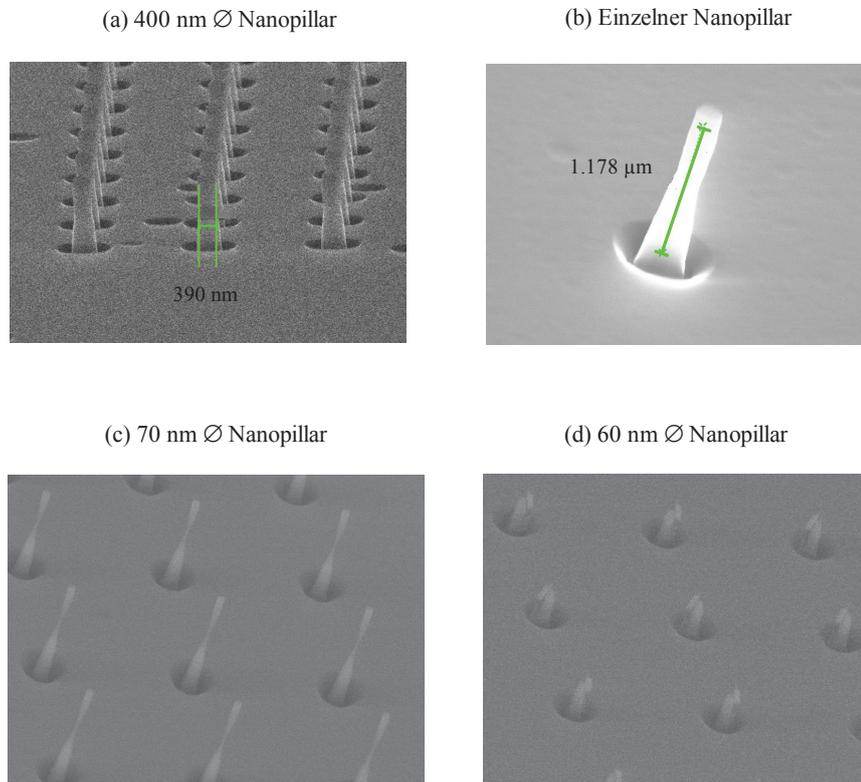


Bild 5.4: (a)-(d) SEM-Bilder der nanostrukturierten Diamantoberfläche. Alle Bilder wurden aufgenommen von Dr. T. Borzenko und mit deren freundlicher Genehmigung verwendet

bestätigt zudem eindeutig, dass das detektierte Signal aus PL von den NV-Zentren besteht.

In Bild 5.4 sind SEM-Aufnahmen der Diamantoberfläche nach dem Ätzen gezeigt. Man erkennt die regelmäßige Anordnung der einzelnen Nanostrukturen. Der laterale Abstand zwischen den Strukturen beträgt $2.5\ \mu\text{m}$ in beide Richtungen. Der Durchmesser der Oberseite im Fall der in Bild 5.4 (a) abgebildeten Strukturen beträgt 390 nm.

An einer vergrößerten Aufnahme eines 200 nm-Struktur in Bild 5.4 (b) kann die Höhe der Säulen genauer zu etwa $1.2\ \mu\text{m}$ abgeschätzt werden. Das Bild verdeutlicht auch, dass jeder Säulen von einem Graben umgeben ist, der ca. ein Zehntel der Säulenhöhe tief ist. Dieser Graben entsteht durch die Reflexion der Ätzionen an den vertikalen Oberflächen der Struktur und wird als *trenching* bezeichnet [177].

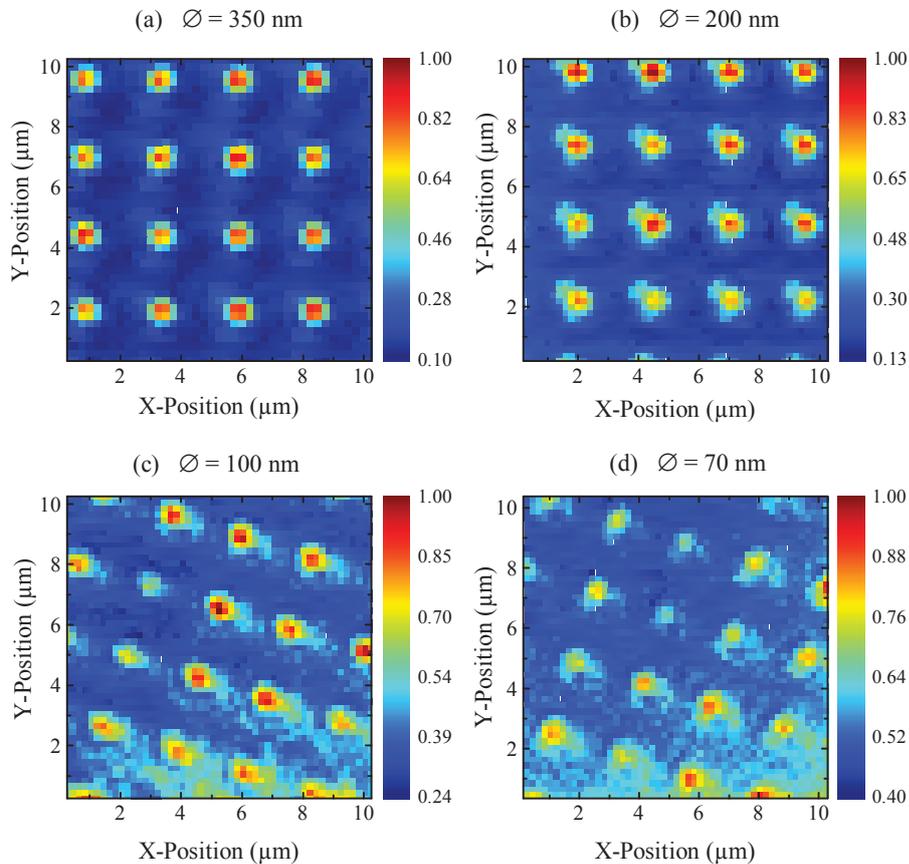


Bild 5.5: (a)-(d) PL-Intensität der implantierten und nanostrukturierten Diamantoberfläche für verschiedene Strukturgrößen

Neben der Grabenstruktur erkennt man in der Tailenbildung in den Säulen einen weiteren unerwünschten Effekt. Dieser tritt bei allen Säulendurchmessern gleichermaßen auf und wird wahrscheinlich durch nicht völlig anisotrop physikalisches Ätzen verursacht [178]. Bei Durchmessern von $\varnothing \leq 70 \text{ nm}$ destabilisiert der Effekt die Säulen allerdings so sehr, dass sie bei geringster Erschütterung des Diamanten in sich zusammenklappen (vgl. Bild 5.4 (c) und (d)). Dies limitiert aktuell den minimal erreichbaren Säulendurchmesser auf 70 nm, obwohl in die zur Lithografie verwendete Lackmaske auch Strukturen mit Durchmessern von bis zu 30 nm geschrieben werden können.

Das PL-Signal während eines lateralen 2D-Scans entlang der Oberfläche der strukturierten Diamanten spiegelt die Anordnung der Nanosäulen wieder. Entsprechend der verwendeten Maske findet man im Abstand von $2.5 \mu\text{m}$ Bereiche klar erhöhter

5.2 Strukturierung von Diamantsäulen und optische Charakterisierung

Intensität. Dies gilt für alle untersuchten Säulendurchmesser. Stellvertretend sind in Bild 5.5 die Scans für die Durchmesser 350 nm, 200 nm, 100 nm und 70 nm gezeigt.

Im Verlauf dieser Messreihe erkennt man den Trend von einem abnehmendem Signal-Rausch-Verhältnis zu kleiner werdenden Durchmessern hin. Aufgrund der homogenen Dichte der NV-Zentren muss sich deren Anzahl innerhalb der Säulen verringern. Da der Signaluntergrund in jeder Messung identisch ist, ist dieser Trend so zu erwarten.

Ausgehend von der Abschätzung, dass die verwendete Strahlendosis während der Implantation zu einer NV-Zentrendichte von etwa $1000\mu\text{m}^{-2}$ führt, erwartet man bei einem Säulendurchmesser von 70 nm nur noch 3 bis 4 Zentren pro Säule. Dies kann erklären, warum bei den großen Durchmessern die Intensität in allen Säulen in etwa gleich hoch ist, während bei den kleinen Durchmessern deutliche Intensitätsschwankungen zu beobachten sind.

Der Zusammenhang zwischen dem Verhältnis von maximaler PL-Intensität zu Signaluntergrund und Flächeninhalt der Säulenoberseite ist allerdings nicht linear. Stattdessen nimmt das Verhältnis unterhalb von etwa 200 nm Durchmesser schneller ab, als man nach Abnahme der beinhalteten Anzahl von NV-Zentren erwarten würde.

In Bild 5.6 (a) ist das zeitliche Abklingen des PL-Signals der NV-Zentren in den Nanostrukturen bis zu einem Durchmesser von 200 nm dargestellt. Dabei sind die unterschiedlichen Durchmesser der Strukturen farblich codiert. Der Datensatz, dem als Durchmesser ein Wert von $10\mu\text{m}$ zugeschrieben wird, wurde dabei nicht an einer Säulenstruktur gemessen, sondern an einer der zur Orientierung dienenden Hilfsstrukturen.

Die Messreihe zeigt deutlich, wie die Abklingzeiten des Signals für alle untersuchten Strukturgrößen deutlich länger sind als die Lebensdauer, die an intrinsischen NV-Zentren im Inneren des Diamantkristalls in Kapitel 2 gemessen wurden ($\tau_L = 13\text{ ns}$). Das Abklingverhalten kann für alle Strukturgrößen mit einem Durchmesser von $\varnothing \geq 200\text{ nm}$ sehr gut durch einen monoexponentiellen Zerfall mit einer Lebensdauer von $\tau_L = 18\text{ ns}$ beschrieben werden.

Da diese Zerfallszeit also unabhängig von den lateralen Abmessungen der Strukturen ist, liegt es nahe, die Ursache für die Verlängerung der Lebensdauer in der vertikalen Position der NV-Zentren relativ zur Oberfläche zu suchen, da diese für alle Strukturgrößen aufgrund der homogenen Implantation nahezu identisch ist.

Eventuelle Rückstände der bei der Strukturierung verwendeten Titanschicht sind dabei als Ursache unwahrscheinlich, da Metallpartikel in der Umgebung der NV-Zentren die Lebensdauer eher noch verkürzen [179].

Hingegen ist bekannt, dass die Lebensdauer von NV-Zentren in Nanodiamanten deutlich länger ist als in makroskopischen Diamanten. Typische Werte der PL-Abklingzeiten in Nanodiamanten liegen zwischen 17 ns und 25 ns [149, 173].

Als Begründung dafür kann wie in Kapitel 3 auf Fermis Goldene Regel zurückgegriffen werden. Die Wahrscheinlichkeit des Übergangs $W_{i,f}$ und damit die Lebens-

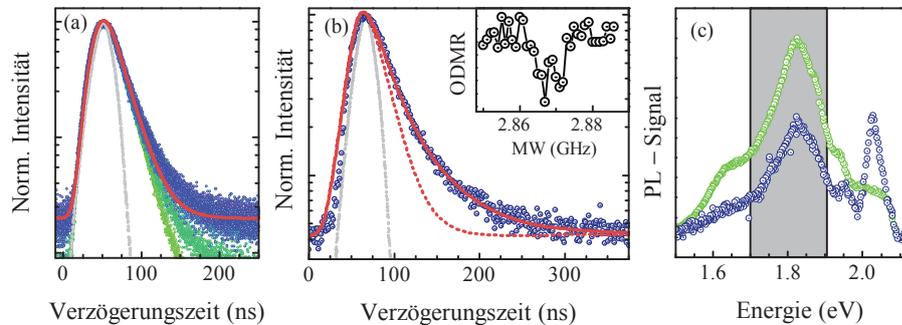


Bild 5.6: (a) Zeitaufgelöstes Abklingverhalten der PL-Intensität der Nanostrukturen. Die unterschiedlichen Strukturgrößen sind über einen Farbverlauf codiert, von großen Strukturen in grün ($\varnothing \approx 10\ \mu\text{m}$) zu kleinen Strukturen in blau ($\varnothing \approx 200\ \text{nm}$). In rot das Modell eines monoexponentiellen Zerfalls mit der Zerfallszeit $\tau_L = 18\ \text{ns}$ nach der Faltung mit der IRF (in grau). (b) Zeitaufgelöstes Abklingverhalten der PL-Intensität der kleinsten untersuchten Strukturgröße mit einem Durchmesser von 70 nm. Die rot gestrichelte Linie entspricht dem Ergebnis des Modells aus Teilbild (a), die durchgezogene Linie das Ergebnis eines biexponentiellen Zerfalls gemäß Gleichung 5.1 nach der Faltung mit der IRF (in grau). Im Einschub ein cw-ODMR-Spektrum der 70-nm-Struktur. (c) Vergleich der cw-PL-Spektren von großen (grün) und kleinen (blau) Strukturen. Der spektrale Bereich, über den während der Messungen in Teilbild (a) und (b) integriert wurde, ist in grau hinterlegt

dauer des angeregten Zustands wird maßgeblich von der Zustandsdichte $D(E_f)$ bestimmt. Dies macht man sich in optischen Resonatoren zu Nutze, wobei ein Emitter in eine Kavität eingebracht wird, in welchem die Zustandsdichte aufgrund der Geometrie oder dielektrischen Struktur maximiert ist. Dadurch lassen sich extrem hohe Übergangsraten bzw. sehr kurze Lebensdauern von angeregten Zuständen erzeugen [180–183].

Eine Grenzfläche zwischen Diamant und Luft in der Nähe eines NV-Zentrums hat jedoch den gegenteiligen Effekt [179, 184]. Eine exakte Berechnung der erwarteten Lebensdauer kann durch finite Differenz-Methoden [185, 186] (*engl. Finite Difference Time Domain*) vorgenommen werden. Als grobe Abschätzung kann dabei gelten, dass die Lebensdauer um so länger ist, je größer der Raumwinkel ist, der von der Grenzfläche in einem bestimmten Abstand um das NV-Zentrum herum eingenommen wird [187].

In diesem Bild können die beobachteten Lebensdauern gut nachvollzogen werden. Die klare Mehrzahl der NV-Zentren in den größeren Strukturen liegt deutlich näher an der Oberseite der Säulen als an deren Seitenwänden, sodass diese keine Rolle spielen. Aufgrund der homogenen Implantation ist der von der Oberfläche eingenommene Raumwinkel für die NV-Zentren in allen Strukturen identisch. Daraus muss sich eine

einheitliche Lebensdauer für diese Strukturen ergeben, wie Bild 5.6 (a) bestätigt.

Dies ändert sich, wenn der Durchmesser der Säulen kleiner wird. Der zeitliche Verlauf des PL-Signals der schmalsten Säulen in Bild 5.6 (b) zeigt, dass im Unterschied zu den Strukturen mit größeren Säulendurchmessern Abweichungen zwischen den Daten und einem monoexponentiellen Zerfall mit der Abklingzeit $\tau_L = 18\text{ ns}$ klar erkennbar sind. Die Signalfanke fällt zu späten Zeiten deutlich langsamer ab, als es durch das Modell beschrieben werden kann. Umgekehrt erzeugt ein Modell mit einer längeren Zerfallskonstante große Abweichungen bei frühen Zeitpunkten.

Der Zerfall des PL-Signals bei diesem schmalen Durchmesser kann hingegen besser durch einen biexponentiellen Zerfall mit zwei unterschiedlichen Abklingzeiten τ_{L1}, τ_{L2} beschrieben werden ¹⁰:

$$I(t) \propto I_1 \exp(t/\tau_{L1}) + I_2 \exp(t/\tau_{L2}) \quad (5.1)$$

Für den Beitrag von I_1 kann dabei wieder auf den Wert von $\tau_{L1} = 18\text{ ns}$ zurückgegriffen werden, sodass dieser Beitrag den verbleibenden NV-Zentren zugeschrieben werden kann. Als Wert für die Zerfallszeit des zusätzlichen Beitrags wird eine Zerfallszeit von $\tau_{L2} = 50\text{ ns}$ verwendet. Die Herkunft dieses zweiten Beitrags lässt sich bislang nicht eindeutig klären.

Vorstellbar ist ein erhöhter Signalbeitrag von neutralen NV^0 -Zentren. Untersuchungen an Nanodiamanten zeigen, dass Oberflächendefekte wie sp^2 -hybridisierter Kohlenstoff als Akzeptoren wirken können, und daher eine Potentialfalle für die Elektronen der geladenen NV-Zentren bilden [76]. Diese wirken umso stärker, je näher das NV-Zentrum an der Oberfläche ist.

Die in Kapitel 5.1 angesprochene Säurebehandlung nach der Implantation und nach dem Ausheizen hat die implantierte Oberfläche des Diamanten von diesen Defekten gereinigt. Beim Ätzen der Nanostrukturen können sich diese Defekte allerdings wieder an den Seitenwänden der Nanosäulen gebildet haben und so eine Umwandlung der geladenen NV-Zentren in neutrale NV^0 -Zentren begünstigen. Dieser Effekt sollte erwartungsgemäß an den kleineren Strukturen stärker ausgeprägt werden. Ein Vergleich der PL-Spektren von großen und kleinen Strukturen zeigt tatsächlich eine stark ansteigende Signalfanke im Bereich der NV^0 -Zentren.

Für die Lebensdauern von NV^0 -Zentren in Nanostrukturen sind bislang keine Werte bekannt. Im Bulk-Material zeigen NV^0 -Zentren allerdings deutlich längere Lebenszeiten als die geladenen NV-Zentren (21 ns zu 13 ns [192]). Gilt der Trend der zunehmenden Lebensdauer in kleiner werdenden Strukturen auch für die neutralen Zentren, kann die beobachtete Lebensdauer von $\tau_{L1} = 50\text{ ns}$ sehr gut verstanden werden.

¹⁰Auf anderen, weniger hell leuchtenden Nanostrukturen ist noch eine dritte, sehr schnelle Zerfallskomponente erkennbar. Die Beobachtung eines zusätzlichen, schnell zerfallenden Signals bei der Beobachtung von oberflächennahen NV^0 -Zentren ist in der Literatur bekannt und wird Oberflächendefekten des Diamanten zugeschrieben [188–191].

Über eine Oxidation der Oberfläche, sei es durch nochmalige Säurebehandlung oder Ausheizen an Luft bei Temperaturen von etwa $T = 550^\circ\text{C}$ [193], können die Akzeptorzustände mit hoher Zuverlässigkeit beseitigt werden. Nach dieser Behandlung sollen die NV-Zentren wieder in der geladenen Konfiguration vorliegen. Die experimentelle Überprüfung an unseren Nanostrukturen steht noch aus.

Ebenfalls denkbar ist eine weitere Verlängerung der Lebensdauer von einzelnen geladenen NV-Zentren aufgrund von Geometrieeffekten. Verschiedene FDTD-Simulationen sagen eine beinahe vollständige Unterdrückung des PL-Signals voraus [194, 195], wenn der Säulendurchmesser Werte von 150 nm unterschreitet.

Da in der Literatur von den Autoren kein Vergleich zwischen den Simulationen und experimentellen Ergebnissen zu finden ist, ist die Relevanz der Simulationen nur schwer richtig einzuschätzen. So wird in der Simulation von Referenz [195] das NV-Zentrum explizit im Zentrum der Nanosäule positioniert, was aufgrund der statistischen Verteilung der NV-Zentren in unseren Strukturen nicht zutreffen wird. Eine Positionsänderung beeinflusst jedoch die Simulationsergebnisse [196]. Zudem sind die geometrischen Abweichungen der Säulenstrukturen wie Graben- und Tailenbildung nicht berücksichtigt, wobei wenigstens die Tailenbildung die dielektrische Umgebung des Emitters stark beeinflusst. Weiterhin sind die Simulationen jeweils nur für eine Wellenlänge gezeigt, während in unseren Experimenten das Signal über einen breiten Wellenlängenbereich integriert wird.

Egal, woher die Verringerung der Signalstärke genau rührt, die Daten aus Bild 5.6 (b) und (c) und die Reproduzierbarkeit der Intensitätswerte über die verschiedenen Säulen gleicher Durchmesser in Bild 5.5 lassen es möglich erscheinen, dass auch Nanostrukturen mit Durchmessern von weniger als 100 nm zuverlässig als NV-Sensoren verwendet werden können. Einschränkend wirkt dennoch die Verringerung der NV-Zentren pro Säule.

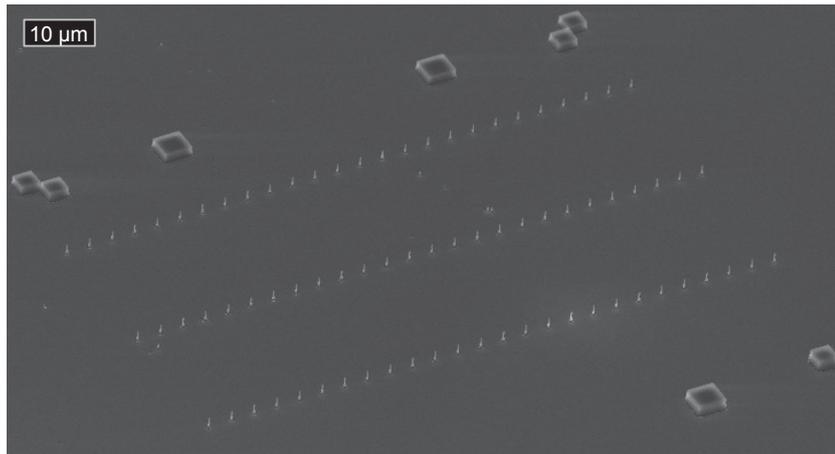
Bei der Wahl des Säulendurchmessers für spätere Anwendungen ist folglich wie üblich abzuwägen, ob man bereit ist, eine Verringerung der Signalstärke zugunsten eines schmaleren Säulendurchmessers und der dadurch verbesserten räumlichen Auflösung in Kauf zu nehmen. Die Gewichtung dieser zwei Punkte kann wohl von Experiment zu Experiment unterschiedlich sein. Im weiteren Teil dieser Arbeit wird mit einem Strukturdurchmesser von 200 nm gearbeitet, da dieser einen für die weiteren Schritte sinnvollen Kompromiss zwischen Signalstärke, Auflösung und mechanischer Stabilität der Struktur darstellt.

5.3 Ablösen des Diamant-Cantilevers

Für den letzten Fertigungsschritt der Nanostruktur muss ein einzelner Diamant-Cantilever aus der kompletten Membran ausgelöst werden. Da der Cantilever Abmessungen von etwa $3\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$ haben soll, wird eine Anordnung gewählt, die einen größeren Abstand der einzelnen Säulen zueinander aufweist, als das in Kapitel 5.2 verwendete

5.3 Ablösen des Diamant-Cantilevers

(a) Implantierte Vorderseite der Diamantmembran



(b) Rückseite der Diamantmembran

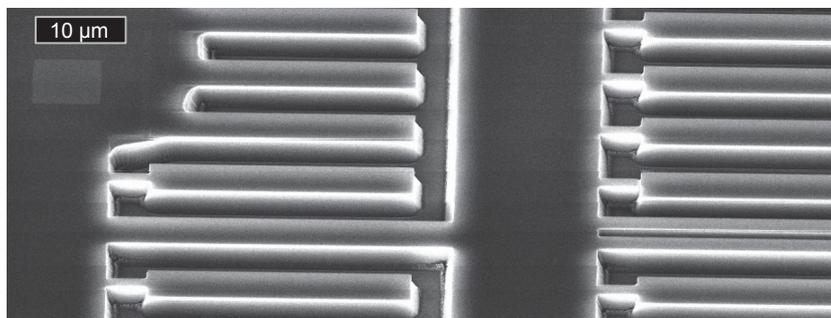


Bild 5.7: (a) SEM-Bild der Anordnung der Nanosäulenstrukturen für die Fertigung von Diamant-Cantilevern und den Hilfsstrukturen zur Orientierung. (b) SEM-Bild der Diamantmembran nach dem letzten Ätzvorgang in der RIE. Die Diamant-Cantilever sind noch über einen schmalen Steg mit der Membran verbunden. Beide Bilder wurden aufgenommen von Dr. J. Kleinlein und mit dessen freundlicher Genehmigung verwendet

Muster. Die veränderte Anordnung kann in Bild 5.7 (a) betrachtet werden. Der Abstand in die eine Richtung beträgt $5\ \mu\text{m}$, in die andere $30\ \mu\text{m}$.

Nachdem die Säulenstrukturen, wie bereits in Kapitel 5.2 beschrieben, in die implantierte Seite des Diamanten geätzt wurden, finden die weiteren Schritte wieder auf der Rückseite des Diamanten statt. Diese wird zunächst ebenfalls mit einem Koordinatensystem versehen, welches aus $30\ \text{nm}$ dicken Goldmarkern besteht.

Unter dem optischen Mikroskop kann der Versatz der Koordinatensysteme beider Oberflächen zueinander bestimmt werden. Da die Position der Säulenstrukturen im Koordinatensystem der Vorderseite bekannt ist, erhält man aus dem Versatz die Position der Nanosäule relativ zum rückseitigen Koordinatensystem. Deshalb ist es möglich, auf der Rückseite eine Maske von $3\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$ -großen Rechtecken so zu definieren, dass diese gegenüber den Nanosäulen auf der Vorderseite ausgerichtet werden können. Im vorliegenden Fall ist die Position so gewählt, dass die Nanosäule innerhalb des Rechtecks liegt, und einen Abstand von etwa $1\ \mu\text{m}$ bis $2\ \mu\text{m}$ von einer der kurzen Seiten des Rechtecks hat.

Das Ergebnis eines weiteren Ätzschrittes in der RIE-Kammer ist in Bild 5.7 (b) gezeigt. Damit die Rechtecke nach dem Ätzen nicht schon komplett von der Membran losgelöst sind, bilden sie keine vollständig geschlossene Struktur, sondern besitzen an der der Nanosäule gegenüberliegenden kurzen Seite noch einen Verbindungssteg zur Membran.

Auf diese Weise kann die Diamantmembran mit der strukturierten Säulen- und Cantileverstruktur sicher in eine Ionenfeinstrahlanlage (*engl.* **F**ocussed **I**on **B**eam microscope) transportiert werden. Darin soll der Cantilever zunächst mit der Spitze eines Wolframdrahts verbunden werden, der kontrolliert an den Cantilever herangefahren werden kann (siehe Bild 5.8 (a)).

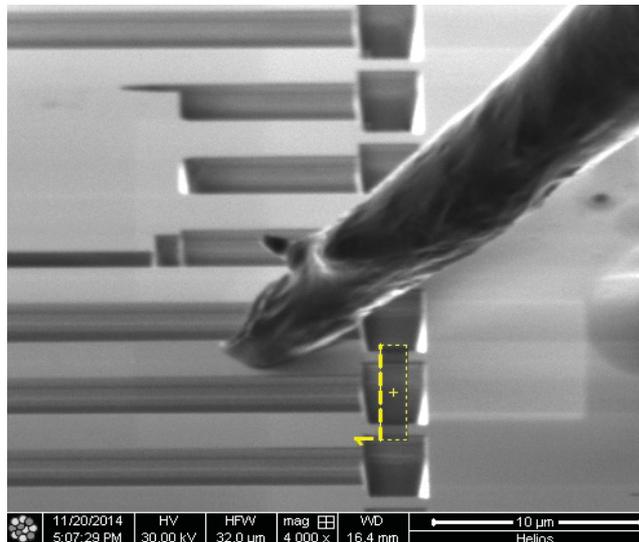
Da die verwendete FIB als duales System neben dem Gallium-Ionenstrahl auch noch einen Elektronenstrahl als Werkzeug liefert, stehen aktuell zur Befestigung des Cantilevers an der Spitze zwei Möglichkeiten zur Verfügung. Die Spitze kann vor dem Heranfahren mit SEM-Kleber benetzt werden, der dann während des Kontakts unter dem Elektronenstrahl ausgehärtet wird. Alternativ kann über der Kontaktstelle mithilfe von Ionenstrahl induzierter Deposition Platin abgeschieden und als Verbindungsmaterial eingesetzt werden.

Nachdem die Spitze mit dem Cantilever fest verbunden ist, wird der Steg mit dem Ionenstrahl durchtrennt und so der Cantilever endgültig aus der Membran herausgelöst.

Bild 5.8 (b) zeigt die fertige Diamant-Wolframdraht-Konstruktion. Wie diese als Rastersonde eingesetzt werden kann, ist Gegenstand des folgenden Kapitels.

5.3 Ablösen des Diamant-Cantilevers

(a) Annäherung der Wolframspitze an den Diamant



(b) fertige Rastersonde

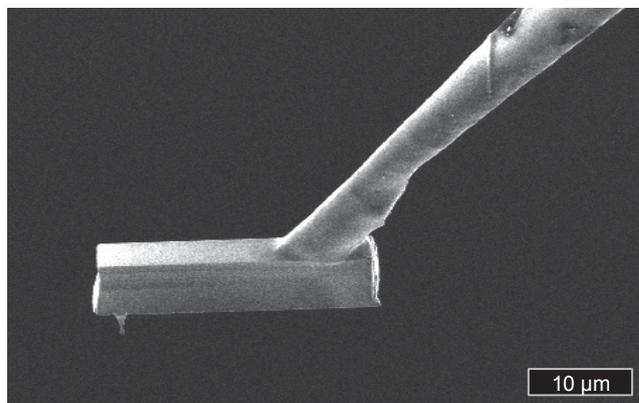


Bild 5.8: (a) Elektronenstrahlabbild der Annäherung der Wolframspitze an die Diamantmembran. Der Cantilever ist noch durch einen kleinen Steg mit der Membran verbunden. Die Wolframspitze ist bereits mit dem SEM-Kleber benetzt. (b) Fertige Rastersonde, nachdem mit dem FIB der Steg zwischen Cantilever und Membran durchtrennt wurde. An der Unterseite des Cantilevers ist die Nanosäule zu erkennen. Beide Bilder wurden aufgenommen von Dr. J. Kleinlein und mit dessen freundlicher Genehmigung verwendet

Kapitel 6

Einsatz der Rastersondentechnologie

Das vorangegangene Kapitel hat demonstriert, wie die Begrenzung der räumlichen Auflösung einer Magnetfeldmessung mit NV-Zentren durch das optische Beugungslimit in nanostrukturierten Diamanten umgangen werden kann. In den gezeigten Cantilevern wirkt nunmehr die Verteilung der NV-Zentren in der Struktur limitierend, da man während einer Messung das Signal von all diesen NV-Zentren gleichzeitig detektiert. Eine Reduzierung der beobachteten NV-Zentren durch noch kleinere Strukturdurchmesser oder niedrigere Implantationsdichten kann dieses Limit daher theoretisch noch weiter nach unten treiben. So gibt die Ausdehnung der elektronischen Wellenfunktion im NV-Zentrum vor, dass das theoretische Auflösungsvermögen bis auf ein Volumen von etwa 1 nm^3 [197] verbessert werden kann.

Um dieses Limit richtig ausnutzen zu können, muss das Experiment hohe Ansprüche hinsichtlich der Positionsgenauigkeit und -stabilität erfüllen, da andernfalls der Drift und das Rauschen der Sensorposition während der Messung eine höhere räumliche Auflösung verhindert. Die identischen Anforderungen treten im Feld der Rastersondentechnologie auf, weswegen auf die Lösungen aus diesem Bereich zurückgegriffen werden kann. Im Speziellen orientiert man sich dabei an einer Umsetzung, die sich im Bereich der Rasterkraftmikroskopie (üblicherweise als AFM bezeichnet, für *engl. Atomic Force Microscopy*) als eine von zwei Standardmethoden etabliert hat [2].

Die Grundzüge der Technologie werden im folgenden ersten Teil des Kapitels erläutert und im zweiten Teil an verschiedenen Strukturen getestet. Der dritte Teil zeigt die bisherigen Ergebnisse, die mit der Diamantspitze erreicht werden konnten, die zum Ende von Kapitel 5.3 hergestellt wurde.

6.1 Einführung in die Rasterkraftmikroskopie

Die gesamte Technologie der AFM hat sich gegen Mitte der 1980er-Jahre aus der Rastertunnelmikroskopie (*engl. Scanning Tunneling Microscopy*) entwickelt. Die Grundidee dahinter basiert auf der Beobachtung in STM-Messungen, dass die zwischen einer Oberfläche und einer Sonde wirkenden Kräfte abhängig von deren Abstand sind [198, 199]. Daraus wurde das Prinzip abgeleitet, die Sonde (in der Originalarbeit

6.1 Einführung in die Rasterkraftmikroskopie

von Binnig *et al.* [200] (übrigens ein Diamant) auf einen flexiblen Träger zu montieren und dann die Antwort des Trägers in Abhängigkeit der Position zu messen. Aus der Antwort erhält man so ein Höhenprofil der untersuchten Oberfläche.

Die Natur der zwischen Oberfläche und Sonde wirkenden Kräfte kann vielfältig sein. Während elektromagnetische Kräfte namensgebend für andere Gebiete der Rasterkraftmikroskopie (*engl.* **E**lectrostatic bzw. **M**agnetic **F**orce **M**icroscopy) wirken, sind in dem als AFM bezeichneten Verfahren hauptsächlich van der Waals- und chemische Kräfte [2, 201] (F_{vdW} bzw. F_{ch}) für die Anziehung zwischen Oberfläche und Sonde verantwortlich.

Der flexible Träger kann als Oszillator betrachtet werden, der durch eine Federkonstante k , seine Eigenfrequenz f_0 und seinen Gütefaktor $Q = f_0/\Delta f$ beschrieben wird. Der Wert Δf gibt die Breite der Resonanzkurve bei der getriebenen Schwingung an.

Die einfachste Anwendung des Verfahrens stellt die statische AFM-Messung dar. In diesem Fall wird während des Rasterns der Sonde die Ablenkung des Trägers gemessen. Die Ablenkung entspricht dann $q = F_{AF}/k$, wobei F_{AF} die Kraft zwischen Oberfläche und Sonde repräsentiert. Da die wirkenden Kräfte allesamt vom Abstand z zwischen Oberfläche und Sonde abhängen, gilt $F_{AF} = F_{AF}(z)$ und damit auch $q = q(z)$.

Obwohl in dieser Methode auch eine atomare Auflösung [202] prinzipiell erreichbar ist, reduziert das starke $1/f$ -Rauschen häufig den Kontrast während einer Messung. Daher werden die meisten Experimente im dynamischen AFM-Modus durchgeführt, in dem der Träger zum Schwingen angeregt wird [203, 204]. Der mit seiner Eigenfrequenz f_0 angeregte, ungestörte Träger schwingt mit einer Amplitude A_0 . Wird die Sonde in die Nähe einer Oberfläche gebracht, ändert sich die Resonanzfrequenz $f = f_0 + \delta f$ durch die zusätzlich angreifenden Kräfte [2]. Da die Anregung nicht verändert wird, ändert sich entsprechend die Amplitude der Trägerschwingung $A = A_0 + \delta A$.

Die Änderungen in der Resonanzfrequenz und der Schwingungsamplitude sind direkt messbar. Die Messmethode hängt von der verwendeten Träger-Sonden-Architektur ab. Heutige AFM-Geräte verfügen meist über einen Siliziumcantilever [205] mit einer wenige nm scharfen Spitze, an dessen schwingender Seite ein Laserstrahl in Richtung eines optischen Sensors reflektiert wird. Aus der Position des reflektierten Laserstrahls können dann einfach Informationen über die Frequenz und Amplitude der Cantileverschwingung gewonnen werden.

Alternativ können Stimmgabeln (*engl.* tuning forks) aus Quarz verwendet werden, z. B. wie sie heute millionenfach in Uhren als Oszillatoren verwendet werden [206]. Dabei wird an einen der beiden Arme eine Spitze montiert, die als Sonde agiert. Da Quarz piezoelektrisch ist, lässt sich über eine metallische Beschichtung bei der Schwingung der beiden Arme ein elektrisches Signal auslesen, welches proportional zur und gleichphasig mit der Auslenkung ist. Für das im Rahmen dieser Arbeit geplante Experiment wird die Verwendung von diesen Quarzoszillatoren gewählt. Damit wird dem Ansatz gefolgt, welcher sich bereits in der Entwicklung von optischen

und akustischen Nahfeldmessungen ausgezeichnet hat [207–209].

Die zu untersuchende Probe oder der Oszillator wird auf einem Stelltisch montiert, damit der Abstand zwischen Oberfläche und Messspitze geregelt werden kann. Nähert man die Messspitze der Oberfläche bis in den Bereich der Wechselwirkung an, entspricht ein bestimmter Amplitudenwert einem bestimmten Abstand z zwischen Oberfläche und Spitze. Diese Amplitude kann über die Piezospaltung der Stimmgabel gemessen und als Sollwert für eine Rückkopplungsregelung dienen. Am beschriebenen Aufbau wird ein Proportional-Integral-(PI-) Regler verwendet. Während des Rasterns kann die Piezospaltung der Stimmgabel kontinuierlich gemessen und als Eingangssignal in der Regelung mit dem Sollwert verglichen werden.

Wenn Abweichungen zwischen Sollwert und Eingangssignal detektiert werden, kann über den Stelltisch der Abstand so korrigiert werden, dass der Abstand zwischen Messspitze und Oberfläche während des gesamten Rasterns konstant ist. Auf diese Weise kann die Position der NV-Zentren relativ zur Oberfläche mit der Genauigkeit der AFM Technologie positioniert werden. Gleichzeitig erhält man durch eine Zuordnung des vertikalen Verfahrenswegs z des Stelltischs zu der entsprechenden lateralen Position (x, y) der Scaneinheiten eine dreidimensionale Abbildung der Oberfläche.

Da die NV-Zentren in der Messspitze jedoch nach wie vor nur optisch angeregt und ausgelesen werden können, muss ein entsprechender AFM-Messstand über einen optischen Zugang verfügen. Dadurch unterscheidet sich der Messstand entscheidend von konventionellen AFM-Versionen. Eine detaillierte Beschreibung des hierfür verwendeten, selbst zusammengestellten Versuchsaufbaus findet man im Appendix A.2.

Im anschließenden Kapitel wird der Aufbau zunächst im Standardbetriebsmodus mit einer Spitze aus Wolfram als Rasterkraftmikroskop getestet.

6.2 Vorcharakterisierung des Rastersondenaufbaus

Als Oszillator werden handelsübliche Stimmgabeln aus Quarz verwendet, die eine Eigenfrequenz bei $f_0 = 32.768\text{ kHz}$ haben. Die nächsthöhere Eigenfrequenz liegt erst bei über 190 kHz [210]. Die Antwort des nicht weiter bearbeiteten Oszillators auf eine externe Anregung ist in Bild 6.1 (a) gezeigt. Der hohe Q-Faktor von etwa $Q = 10000$ demonstriert die Güte des ungestörten Oszillators.

Bringt man an einen Arm der Stimmgabel eine AFM-Spitze aus Wolfram an, wird einerseits die Masse des Oszillators verändert, andererseits auch die Symmetrie der Stimmgabel gestört. Diese beiden Effekte führen in Kombination zur Verschiebung der Resonanzfrequenz f_0 des Oszillators und zu einer deutlich höheren Dämpfung, was sich in einer Verringerung des Gütefaktors Q in Bild 6.1 (b) zeigt.

Der Effekt der hohen Dämpfung kann zumindest teilweise aufgehoben werden, indem man auf den zweiten Arm der Stimmgabel eine zweite Masse anbringt, die in Gewicht und Position ungefähr der Wolframkonstruktion auf der anderen Seite entspricht. Für die Messung in Bild 6.1 (c) ist daher ein Tropfen Klebstoff auf den

6.2 Vorcharakterisierung des Rastersondenaufbaus

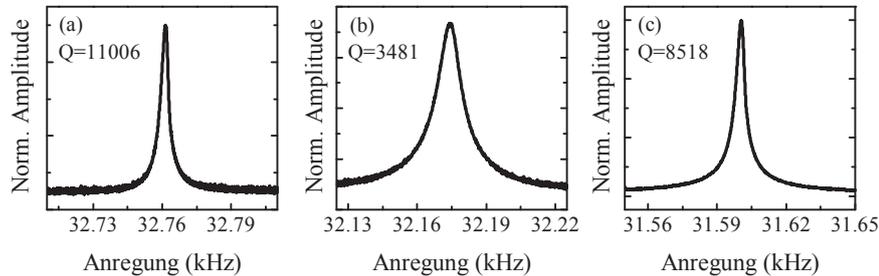


Bild 6.1: Resonanzkurven der modifizierten Quarzoszillatoren bei identischer Anregungsamplitude. (a) Ungestörter Oszillator. (b) Oszillator mit einem Klebepunkt und einer Wolframspitze auf einem Arm. (c) Oszillator mit einem Klebepunkten und einer Wolframspitze auf einem und einem weiteren Klebepunkt auf dem anderem Arm

zweiten Arm gegeben. Aufgrund der noch höheren Gesamtmasse verschiebt sich die Resonanzfrequenz zu noch tieferen Frequenzen.

Wird der so präparierte Oszillator nun in die Nähe einer Probenoberfläche gebracht, kann das Höhenprofil der Oberfläche einer Teststruktur in einer AFM-Messung überprüft werden. Bild 6.2 zeigt eine zweidimensionale Rasteraufnahme der Oberfläche. In Falschfarben ist der Stellwert angegeben, um den die Position des z-Scanners während der Messung geändert werden musste, um den Sollwert der Schwingungsamplitude des Oszillators einzuhalten.

Als schnelle Achse bezeichnet man während einer zweidimensionalen Rastermessung die Achse, entlang derer der Messbereich komplett abgefahren wird, bevor man einen Schritt in Richtung der langsamen Achse macht, um dann wieder entlang der schnellen Achse zu messen.

Man erkennt deutlich die streifenartige Teststruktur. Die Struktur hat eine nominelle Profilhöhe von 20 nm, was in der Messung gut reproduziert werden kann. Ein Schnitt in Richtung der langsamen Achse vermittelt einen Eindruck der Stabilität des Aufbaus.

Im Schnitt entlang der schnellen Achse erkennt man ebenso wie bereits im zweidimensionalen Bild, dass das laterale Profil der Streifen nicht regelmäßig abgebildet, sondern verzerrt dargestellt wird. Dies ist ein typisches Artefakt bei der spannungsgesteuerten Bewegung über sehr weite Bereiche wie 35 μm von Piezokristallen, die nicht über eine Regelung der lateralen Position verfügen [211, 212].

Artefakte wie diese können einerseits außerhalb der Piezoeinheiten entstehen, wenn die Kabel, welche die bewegten Scaneinheiten kontaktieren, unter Zugspannung stehen. Dabei kann es passieren, dass während der Bewegung der Scaneinheiten die Bewegung nicht mehr linear in die gewünschte Richtung erfolgt. Die Folge sind solche Verzerrungen des Bildes.

Andererseits können diese Artefakte auch direkt durch die verwendeten Piezokris-

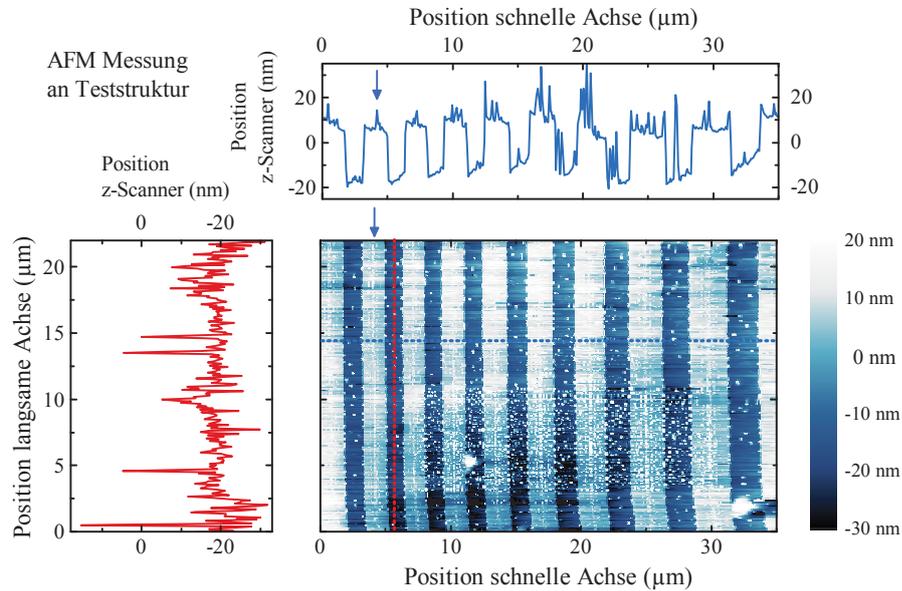


Bild 6.2: Zweidimensionale AFM-Aufnahme einer Teststruktur mit Schnitten entlang der schnellen (blau) und der langsamen Achse (rot). Die einzelnen Streifen sind nominell 20nm hoch. Die linienförmige Erhöhung in der Mitte der Streifen (stellvertretend gekennzeichnet durch die blauen Pfeile) entsteht bei der Lithografie der Streifen und ist daher kein Artefakt

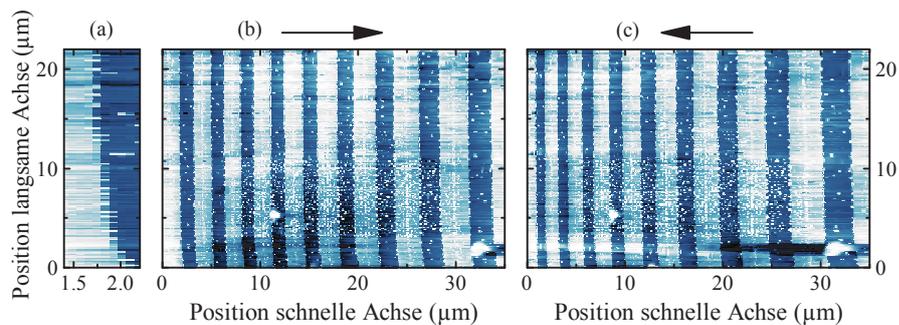


Bild 6.3: Zweidimensionale AFM-Aufnahmen der Teststruktur aus Bild 6.2 mit identischer Farbskala. (a) Vergrößerte Darstellung einer der Streifenkanten zur Verdeutlichung des Kriecheffekts. (b) Zweidimensionales Bild der Teststruktur in Vorwärtsrichtung entlang der schnellen Achse gemessen. (c) Zweidimensionales Bild der Teststruktur in Rückwärtsrichtung entlang der schnellen Achse gemessen; identischer Bereich wie in Teilbild (b). Man erkennt die stärkere Verzerrung der Streifenstruktur in Rückwärtsrichtung

talle verursacht werden. Bekannte Fehler bei der piezogesteuerten Bewegung von Positionieren sind Kriech- (*engl.* Creep) und Hysterese-Effekte [213]. Kriechen der Piezokristalle tritt auf, nachdem eine Spannung zur Bewegung der Positionierer angelegt wurde. Die Antwort des Piezopositionierers auf die Spannung kann in zwei Anteile aufgespalten werden. Einerseits eine schnelle Verschiebung, die auf μs bis ms-Zeitskala geschieht, und andererseits ein langsamer Drift, der erst nach vielen Sekunden bis wenigen Minuten abgeschlossen ist [214]. Die Folge davon lässt sich ebenfalls in Bild 6.2 erkennen. Die Piezos werden über eine weite Strecke bewegt, bevor am Punkt (0,0) die Messung startet. Während der ersten Messungen entlang der schnellen Achse wirkt der Creep noch nach. Als Folge verschiebt sich die Probe noch während der Messung ein wenig und die Streifenstruktur erscheint bei niedrigen Werten der langsamen Achse leicht gebogen wie in Bild 6.3 (a) verdeutlicht ist.

Die Hysterese bewirkt, dass Messungen in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung entlang der schnellen Achse nicht zu identischen Höhenprofilen führen. Verursacht wird dies von Nichtlinearitäten im intrinsischen Zusammenspiel zwischen angelegter Spannung und Ausdehnung des Piezokristalls, verursacht von molekularer Reibung [211, 215, 216]. Da diese Nichtlinearitäten unter konstanten Umgebungsbedingungen reproduzierbar sind, wie man an der Gleichmäßigkeit der Verzerrung für unterschiedliche Positionen auf der langsamen Achse erkennt, kann die Verzerrung aus den Daten prinzipiell durch eine Kalibrierung korrigiert werden.

Verändern sich jedoch die äußeren Bedingungen wie insbesondere die Umgebungstemperatur, muss eine erneute Kalibrierung stattfinden. Ebenso ist die Hysterese für unterschiedlich große Scanbereiche unterschiedlich stark ausgeprägt. Für den späteren Einsatz bei tiefen Temperaturen bedeutet dies, dass idealerweise vor oder nach jeder Messung eine Kalibrierung der Scaneinheiten vorgenommen werden muss, um die beste Positionsgenauigkeit während einer Rastersondenmessung zu erhalten.

Viele der weiteren Herausforderungen, die bei den Bemühungen um eine deutlich verbesserte Auflösung der Probenoberfläche oder erheblich rauschärmere Bilder auftreten, sind in den letzten Jahren von verschiedenen Gruppen gemeistert worden. Obwohl dadurch in großer Bandbreite großartige Experimente mithilfe der AFM-Technologie möglich wurden¹¹, sind diese Lösungen für diese Arbeit jedoch vernachlässigbar. Die Aufgabenstellung verlangt, über einen größeren Bereich eine Positionsgenauigkeit im Bereich von 10 nm zu erhalten, da dies die vom NV-Sensor vorgegebene, erzielbare Auflösung ist. Auf dieser Skala liefert die hier verwendete Umsetzung der AFM-Technik Ergebnisse, die mit denen spezialisierterer Geräte vergleichbar ist. Zur Verdeutlichung ist in Bild 6.4 ein Vergleich zwischen zwei AFM-Bildern der gleichen Bismutselenid- (Bi_2Se_3 -) Probenoberfläche gezeigt.

Der Scanbereich ist kleiner als in Bild 6.3 gewählt, um Artefakte durch Nichtli-

¹¹Die Themenserie „Advanced atomic force microscopy techniques“ im Beilstein Journal of Nanotechnology gibt einen Überblick über den aktuellen Stand der Technologie. Stellvertretend hierfür sei an dieser Stelle auf Referenz [217] verwiesen.

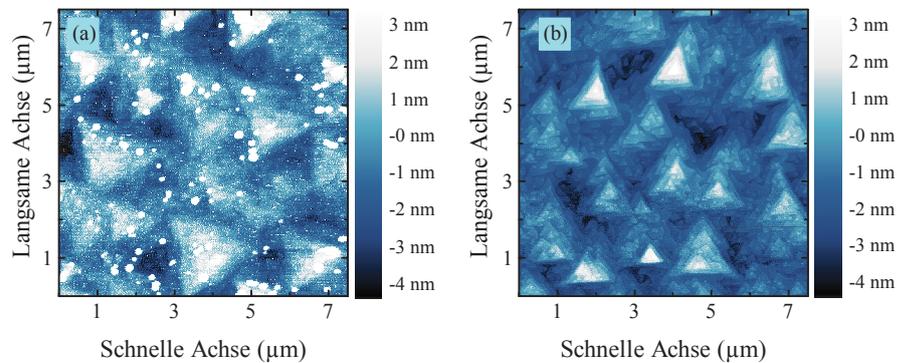


Bild 6.4: AFM-Aufnahmen einer Oberfläche eines MBE-gewachsenen Bi_2Se_3 -Kristalls. (a) AFM-Aufnahme mit einem Quarzoszillator und Wolframspitze als Messspitze. (b) AFM-Aufnahme [218] mit einem strukturierten Siliziumcantilever in einem anderen AFM-Aufbau (Fa. DME)

nearitäten möglichst zu vermeiden. Außerdem wurde vor der Messung eine Wartezeit von 5 min eingehalten, um Verzerrungen im Bild durch Creep vorzubeugen.

In beiden Bildern ist die pyramidenartige Struktur der Oberfläche klar zu erkennen, die eine Folge des Wachstumsstarts der Bi_2Se_3 -Schicht ist [219]. In den Daten des Quarzoszillator-AFM ist es nicht möglich, die einzelnen Stufen der Pyramide eindeutig aufzulösen. Allerdings stimmen die vertikalen Variationen entlang der Oberflächen mit jeweils etwa $\Delta z = 7 \text{ nm}$ sehr gut überein.

Dies demonstriert deutlich, dass die Regelung des Abstands zwischen Oberfläche und Messspitze sehr zuverlässig eine Positionsgenauigkeit im Bereich von etwa 1 nm liefert. Die laterale Genauigkeit der Positionierer kann immerhin zu einigen 10 nm abgeschätzt werden, da die Position der Streifenkante in Bild 6.3 (a) nach dem beinahe abgeschlossenen Krieeffekt nur noch innerhalb eines Pixels variiert, welcher in der Messung einem Bereich von $d = 87.5 \text{ nm}$ entspricht.

In Bild 6.5 ist nachgewiesen, wie die beiden weiteren, elementaren Anforderungen der Tieftemperatureignung und die Möglichkeit zur Durchführung von ODMR-Experimenten vom Aufbau erfüllt werden.

Die Tieftemperatureignung des Aufbaus kann überprüft werden, indem die Resonanzkurve des Quarzoszillators verfolgt wird, während in den Probenraum flüssiges Helium aus dem umgebenden Heliumbad gesaugt wird. Für die Aufnahme des Datensatzes in Bild 6.5 (a) wurde etwa eine Stunde gewartet, nachdem am Temperatursensor beim Heliumeinlass in den Probenraum eine Temperatur von 1.7 K erreicht wurde. Man erkennt eine leichte Verringerung sowohl der maximalen Amplitude als auch der Resonanzbreite. Unter Berücksichtigung dieser beiden Effekte zeigt die Messung

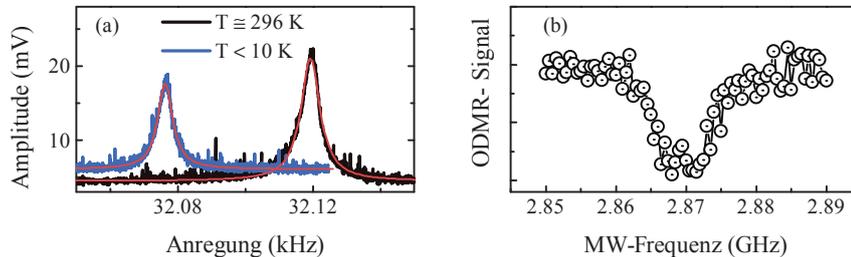


Bild 6.5: (a) Resonanzkurve des Quarzoszillators mit Wolframspitze bei Raumtemperatur (schwarz) und tiefen Temperaturen (blau). Die Temperatur der blauen Kurve ist dabei nur eine vorsichtige Schätzung. Der nächstgelegene Temperatursensor (am He-Einlass des Probenraums) zeigte während der Messung eine Temperatur von $T = 1.7$ K an. Beide Messkurven können sehr gut durch ein Lorentzmodell beschrieben werden (rot). (b) ODMR-Messung an einem CVD-Diamant im Nullfeld

jedoch, dass tiefe Temperaturen erwartungsgemäß kein generelles Hindernis für die Messung der Schwingungsamplitude des Quarzoszillators sind.

Die experimentellen Daten der cw-ODMR-Messung aus Bild 6.5 (b) hingegen entsprechen exakt dem bekannten Nullfeldspektrum der NV-Zentren in Diamant, womit die Durchführbarkeit von ODMR-Messungen an diesem Aufbau unter Beweis gestellt ist. Das Mikrowellenfeld wurde dabei durch ein unterhalb des Diamanten liegendes Exemplar der in Kapitel 4 entwickelten Antennenstruktur an den Diamanten geführt.

Damit sind alle Voraussetzungen erfüllt, die der experimentelle Aufbau haben muss, um von der Verringerung der räumlichen Auflösung einer Magnetfeldmessung durch den nanostrukturierten Diamantcantilever profitieren zu können.

6.3 Diamant als Rasterkraftsonde

In den Messungen des vorangegangenen Kapitels wurde als Rastersonde die Spitze eines dünnen Wolframdrahtes verwendet, welcher an die Stimmgabel geklebt wurde. Für die Rastermagnetometrie muss die Wolframspitze durch die Diamantstruktur aus Kapitel 5.3 ersetzt werden.

Wie in jenem Kapitel erwähnt, stehen zwei mögliche Träger für die Diamantstruktur zur Auswahl. Es kann entweder ein Wolframdraht oder ein Quarzrohr verwendet werden. In den ersten Versuchen hat sich der Wolframdraht allerdings bislang als untauglich erwiesen.

Der Grund dafür ist, dass nach dem Befestigen des Drahts an der Stimmgabel der überstehende Teil des Drahts entfernt werden muss. Dadurch wird sowohl das zusätzliche Gewicht, welches man der Stimmgabel hinzufügt, als auch die Asymmetrie des Oszillators verringert. Außerdem würde andernfalls dieser Teil des Drahts die Linse im Aufbau verkratzen (vgl. Bild 6.6 (a)).

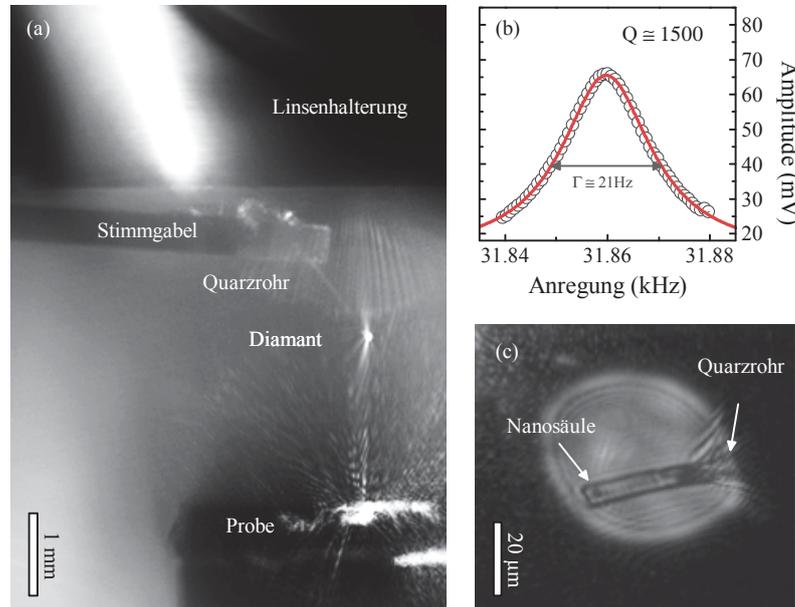


Bild 6.6: (a) Reales Bild der Rastersondenapparatur. Die Diamantstruktur ist durch ein Quarzröhrchen mit der Stimmgabel verbunden. (b) Resonanzkurve der Stimmgabel in Teilbild (a) (Daten in schwarz, Lorentzfit in rot). Der Gütefaktor von $Q \approx 1500$ ist signifikant niedriger als die Gütefaktoren, die bei der Befestigung einer Wolframspitze erreicht wurden. (c) Optisches Bild des Diamantcantilevers im Aufbau, aufgenommen durch die obere Linse in Teilbild (a). Am rechten Rand des beleuchteten Bereichs erkennt man ein keilförmiges Muster, welches vom Quarzrohr herrührt. Am linken Rand der Diamantstruktur zeigt sich ein dunklerer Bereich, der mutmaßlich von der Nanosäule auf der Unterseite der Struktur verursacht wird

Die Fokusslänge der verwendeten Linse ist mit etwa 1.5 mm recht knapp bemessen. Dies schränkt zwar massiv den zur Manipulation verfügbaren Platz zwischen Linse und Probe ein. Die Auswahl an verfügbaren Linsen bzw. Linsensystemen ist jedoch stark begrenzt, da der Aufbau auch bei tiefen Temperaturen verwendet werden soll. Linsen für diesen Temperaturbereich besitzen häufig nur geringe Durchmesser, um die Spannung zwischen Linse und Linsenhalterung aufgrund unterschiedlicher thermischer Expansionskoeffizienten möglichst klein zu halten. Da aber eine hohe numerische Apertur der Linse wünschenswert ist, um aufgrund der erreichbaren niedrigen Strahldurchmesser in der Fokusebene hohe Leistungsdichten der optischen Anregung und eine hohe Detektionseffizienz der NV-Lumineszenz zu erhalten, fiel die Wahl dennoch auf eine Linse mit einer kleinen Fokusslänge.

Beim Abwickeln des Drahtes oberhalb der Stimmgabel werden aufgrund der Härte des Elements Wolfram starke Erschütterungen auf die gesamte Struktur übertragen.

6.3 Diamant als Rasterkraftsonde

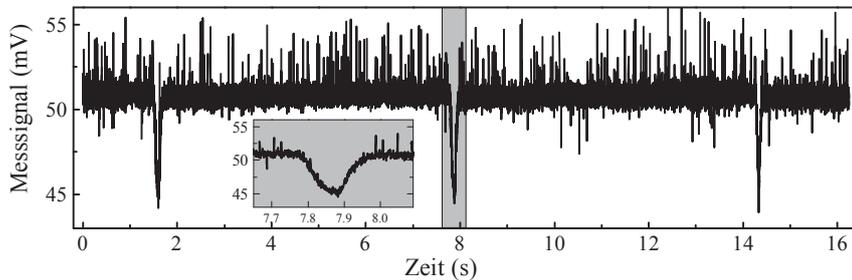


Bild 6.7: Dreimaliges Annähern der Diamantspitze an die Probenoberfläche. Wenn die Probe nah genug an die Spitze gebracht wurde und die Kräfte zwischen Oberfläche und Messspitze daher ausreichend groß sind, beginnt man den Einfluss der Wechselwirkung in der Signalamplitude des Oszillators zu erkennen. Nach dem Unterschreiten eines bestimmten Schwellenwerts (in diesem Fall ≈ 44.7 mV), wird die Spitze sofort wieder von der Oberfläche weggezogen, um Schäden an Spitze oder Oberfläche zu vermeiden. Der in grau hinterlegte Bereich der zweiten Annäherung ist im Einschub vergrößert dargestellt

Als Resultat scheint die Struktur so stark beschädigt zu werden, dass bei keiner der untersuchten Stimmgabeln noch eine Resonanz innerhalb eines weiten Frequenzbereichs (20 kHz bis 35 kHz) beobachtet werden konnte.

Aus diesem Grund wurde zur Befestigung der Diamantstruktur an die Stimmgabel auf ein präpariertes Quarzrohr wie in Ref. [44] zurückgegriffen. Das Ausgangsmaterial sind Quarzröhrchen mit einer Dicke von 0.5 mm, die mithilfe eines laserbasierten Mikropipettenziehers erhitzt und in die Länge gezogen werden, bis sie ausreichend dünn sind, um die Diamantstruktur kontrolliert an ihrer Spitze zu montieren.

Nach dem Ankleben des Quarzrohrs an die Stimmgabel kann der überstehende Rest des Rohrs ohne Probleme mit einem Skalpell entfernt werden. Bild 6.6 (a) zeigt, dass dadurch die Stimmgabel sehr nah an die Linsenhalterung heran gefahren werden kann, während der Diamant im Fokus der Linse bleibt, sodass der Abstand zwischen Stimmgabel und Diamant maximal ist. Ein großer Abstand zwischen Stimmgabel und Diamant ist wünschenswert, da in diesem Fall die Stimmgabel nur innerhalb eines geringen Raumwinkels den Diamant von der Linse abschirmt, und daher sowohl die optische Anregung als auch die Detektion nur minimal beeinflusst.

In Bild 6.6 (b) erkennt man die Resonanzkurve der so bearbeiteten Stimmgabel. Der Wert des Gütefaktors liegt unterhalb der Werte, die an den Stimmgabeln mit Wolframspitzen beobachtet werden. Der Grund hierfür ist nicht eindeutig, möglicherweise hat die niedrigere Steifigkeit des dünnen Quarzrohrs einen stärker dämpfenden Einfluss auf das Gesamtsystem.

Dank der hohen numerischen Apertur der Linse und dem damit verbundenen hohen optischen Auflösungsvermögen gelingt es über eine Abbildung der Objektebene ohne Probleme, die Position der Diamantstruktur in der Fokusebene zu überprüfen und

relativ zur optischen Anregung zu positionieren. Im Beispiel von Bild 6.6 (c) lässt sich sogar die Position der Nanostruktur auf der Diamantunterseite als dunkler Fleck erkennen.

Die Annäherung der Diamantspitze an die zu untersuchende Probenoberfläche erfolgt nach der üblichen Standard-AFM-Routine. Durch eine Kombination von Translationen der Positionier- und Scaneinheiten wird die Spitze immer näher an die Oberfläche herangeführt, bis die gemessene Schwingungsamplitude einen vorgegebenen Schwellenwert erreicht.

Da die Annäherung durch die Kombination von Bewegungen der Positionier- und Scaneinheiten geleistet wird, verringert sich der Abstand zwischen Spitze und Oberfläche nicht linear, sondern stufenförmig. Aus diesem Grund ist das Messsignal während der Annäherung in Bild 6.7 nicht gegen den tatsächlichen Abstand, sondern gegen die Zeit aufgetragen. Man erkennt dabei, dass das Signal solange konstant bleibt, bis ein deutlicher Einfluss der Oberfläche auf die Signalstärke zu erkennen ist.

Sobald die Signalstärke unter den vorgegebenen Schwellenwert fällt, wird die Spitze wieder zügig von der Oberfläche wegbewegt, um ein unkontrolliertes Kratzen der Spitze an der Oberfläche und mögliche Schäden zu vermeiden. Erst nachdem auf diese Art die Spitze in unmittelbare Nähe zur Oberfläche gebracht wurde, wird mit der Feineinstellung der Regelparameter für die Regelschleife fortgefahren.

Die Änderung der Signalstärke bei der Annäherung an die Probenoberfläche bildet die Grundidee der Rasterkraftmikroskopie. Die Tatsache, dass eine solche Änderung auch beobachtet werden kann, wenn als Messspitze der nanostrukturierte Diamant verwendet wird, beweist die grundsätzliche Eignung des entwickelten Sensors.

Die untersuchte Spitze kann daher direkt als Sonde in einer AFM-Messung verwendet werden. Eine Anordnung von $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ breiten und $50\ \text{nm}$ hohen Kobaltstrukturen, die auf ein Siliziumsubstrat aufgebracht sind, dient als Teststruktur für die Demonstration der Rasterkraftmikroskopie mit dem strukturierten Diamant.

Bei der hier vorgestellten Familie von Messspitzen ist eine Rasterkraftmessung allerdings bislang deutlich schwieriger durchzuführen als bei den vormals verwendeten Wolframspitzen. Der Grund hierfür liegt mutmaßlich in der hohen Flexibilität des verwendeten Quarzrohrs. So führt die wirkende Kraft zwischen Oberfläche und Messspitze nicht nur zu einer wahrnehmbaren Änderung der Signalstärke, sondern auch zu einer Biegung des gesamten Quarzrohrs. Diese Biegung führt zu einer relativen, lateralen Verschiebung zwischen Probenoberfläche und Messspitze bzw. dem gesamten Diamantcantilever.

Die Verschiebung der Messspitze kann in den Bildern 6.8 (a) - (i) deutlich beobachtet werden. Auf den Bildern ist die Objektebene der Linse wie in Bild 6.6 (c) abgebildet, allerdings diesmal mit der Probe in unmittelbarer Nähe zur Diamantspitze. Von (a) nach (i) wird die Probe schrittweise um insgesamt etwa $3\ \mu\text{m}$ bis $4\ \mu\text{m}$ weiter an die Spitze herangefahren. Dabei zeigt sich, dass sich die Spitze mehr und mehr in Richtung des Fokus des Anregungslasers bewegt.

6.3 Diamant als Rasterkraftsonde

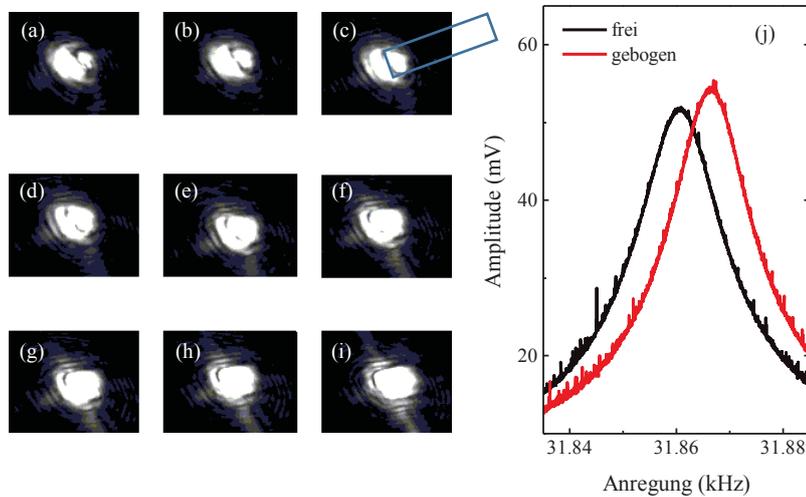


Bild 6.8: (a) - (i) Bild der Objektebene der Linse. Man erkennt die Reflexion des Anregungslasers auf der Probenoberfläche sowie die rechteckige Struktur des Diamantcantilevers. Die Probe wird in den Bildern von (a) nach (i) schrittweise dem Cantilever angenähert. Der Cantilever verschiebt sich während dieser Annäherung in lateraler Richtung. Dies muss von einer Biegung des Quarzrohrs verursacht sein, welches die Stimmgabel mit dem Diamanten verbindet. Zur Verdeutlichung des Diamantcantilevers ist in Teilbild (c) ein Rechteck eingezeichnet, welches die groben Abmessungen des Cantilevers angibt. (j) Schwarz: Resonanzkurven des ungestörten Quarzoszillators. Rot: Resonanzkurve des Quarzoszillators mit gebogenem Quarzrohr

Eine gleichzeitige Betrachtung der Resonanzkurve des Quarzoszillators verrät, dass sich diese nicht so verhält, wie man es nach der kontinuierlichen Verschiebung der Spitze erwarten würde. Nachdem sich die Position des Diamanten aufgrund der Wechselwirkung zwischen Probe und Spitze verschoben hat, hat sich das Maximum nicht zu kleineren Frequenzen und niedrigeren Werten verschoben, sondern ist im Gegenteil größer geworden und hat sich zu höheren Frequenzen verschoben.¹²

Über die Gründe dieser atypischen Resonanzverschiebung lassen sich bislang nur Vermutungen anstellen. Eventuell ist das freischwingende Quarzrohr so elastisch, dass durch die Biegung verschiedene Schwingungsmoden des Rohrs unterdrückt werden,

¹²Darauf folgende Schritte der Annäherung lassen die Struktur der Resonanzkurve wiederum nahezu unverändert. Erst nach einer erheblich größeren Anzahl von Schritten erkennt man wieder eine Änderung der Resonanzkurve. Die Diamantstruktur ist in diesem Fall aber bereits deutlich aus dem optisch beobachtbaren Bereich herausgeschoben. Damit gibt es generell zwei Abstandsbereiche, in denen das Prinzip der Rasterkraftmikroskopie betrieben werden: Den Bereich vor der lateralen Verschiebung der Spitze, und den Bereich, nachdem die Spitze schon deutlich verschoben ist. Im zweiten Bereich ist jedoch zu befürchten, dass der tiefste Punkt der Gesamtkonstruktion Stimmgabel - Quarzrohr - Diamantstruktur nicht mehr der Diamantpillar ist, sondern eine Kante der Diamantstruktur, da das Quarzrohr bereits stark gebogen ist. Aus diesem Grund empfiehlt sich eindeutig der erste Bereich für das weitere Arbeiten.

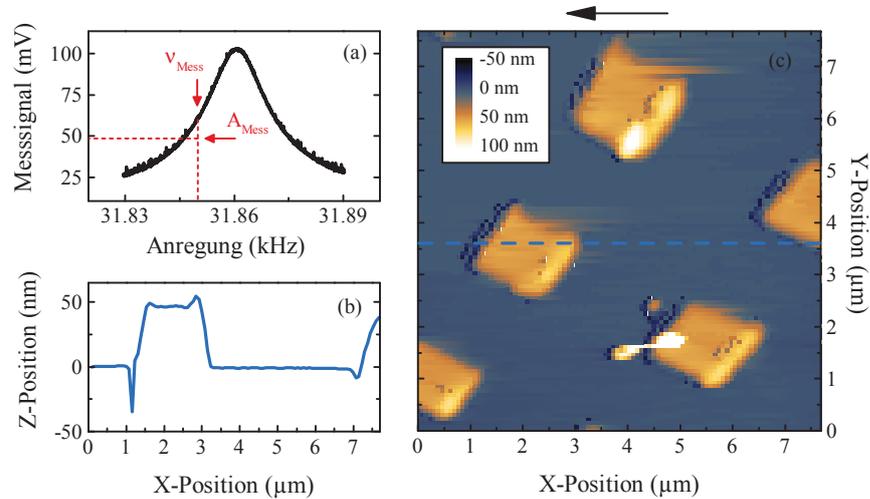


Bild 6.9: (a) Resonanzkurve des freien Quarzoszillators mit Diamantspitze. Die für die weiteren Rasterkraftmessungen verwendete Detektionsfrequenz und Stellgröße für die Signalstärke sind in rot markiert. (b) Einzelner Linienscan über ein Element der Kobaltstruktur. Die Strukturhöhe von 50 nm wird gut wiedergegeben. Die gemessene Breite des Profils ist größer als die nominale Breite der Strukturen, da der Scan diagonal zu den Kanten der Elemente durchgeführt wird. (c) Zweidimensionale Profilkarte der Kobaltstruktur. Die einzelnen Elemente der Struktur sind gut zu erkennen. Der Pfeil über der Karte gibt die Scanrichtung an, mit der die Karte gemessen wurde. Der Linienscan aus Teilbild (b) wurde entlang der blauen Linien aufgenommen

sodass die Gesamtkonstruktion steifer wird. Die sich daraus ergebende höhere Federkonstante k führt zu einer Erhöhung der Resonanzfrequenz und einer verringerten Dämpfung.

Da sich die Resonanzkurve im Fall der Annäherung an die Probenoberfläche also zu höheren Frequenzen verschiebt, muss die Regelung während einer Rasterkraftmessung auf einer Frequenz der niederfrequenten Flanke der Resonanz durchgeführt werden, da nur dort ein monotoner Zusammenhang zwischen Signalstärke und Abstand zur Probenoberfläche gilt.

Die hohe Flexibilität führt weiterhin dazu, dass schnelle Bewegungen der Scaneinheiten zu starken Schwingungen der Spitze führen. Aus diesem Grund müssen sowohl die lateralen Bewegungen während des Rasterns als auch die vertikalen Bewegungen aufgrund der Abstandsregelung erheblich langsamer ausgeführt werden als beim Arbeiten mit Wolframspitzen, die über ein extrem hohes Elastizitätsmodul und daher eine vergleichsweise hohe Steifheit verfügen.

Die Auswirkungen können in Bild 6.9 (b) beobachtet werden. Das Profil der vorgegebenen Struktur kann qualitativ und quantitativ gut reproduziert werden. Allerdings erkennt man zwei qualitative Unterschiede im Vergleich zum gemessenen Profil aus

6.3 Diamant als Rasterkraftsonde

Bild 6.2. Der Anstieg an den Kanten der Struktur erfolgt langsamer bzw. flacher als zuvor beobachtet, und es sind deutliche Überschwinger in den Profilen zu erkennen.

Beide Artefakte können über eine Erhöhung der PI-Werte prinzipiell korrigiert werden. Ein höherer P-Wert schärft die Kanten in den gemessenen Profilen, während ein höherer I-Wert die Überschwinger reduziert. Da beide Erhöhungen allerdings mit einer schnelleren vertikalen Bewegung der Scaneinheiten einhergehen, stören dann die auftretenden Schwingungen der Spitze die Regelung so stark, dass keine sinnvollen Ergebnisse mehr erzielt werden können.

Trotz der beschriebenen Einschränkungen können die Elemente der Kobaltstruktur im Rasterkraftbild sehr gut aufgelöst werden. Die in Bild 6.9 (c) beobachtbaren Verzerrungen sind auf einen leichten Temperaturgang im Labor zurückzuführen. Eine Änderung der Temperatur führt zu einer Ausdehnung sowohl der Halterung der Probe als auch der Halterung der Stimmgabel. Da sich diese dadurch willkürlich gegeneinander verschieben, allerdings nur die Variation der vertikalen Position durch die Abstandsregelung kompensiert wird, kann im fertigen Bild eine laterale Verzerrung der Kobaltstruktur beobachtet werden.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene relevante Teilschritte der Entwicklung eines Rastersondenmagnetometers zum Einsatz bei Raumtemperatur und tiefen Temperaturen geleistet, welches auf der Verwendung eines Ensembles von Stickstoff-Fehlstellen-(*engl.* Nitrogen-Vacancy-) Zentren in Diamant als Messsonde basiert. Die verschiedenen Kapitel demonstrieren die einzelnen Schritte und zeigen bereits die Integration der unterschiedlichen Entwicklungswege.

In mehreren Experimenten wurden die Charakteristika des NV-Zentrums in Diamant demonstriert, die für seinen Einsatz als Magnetfeldsensor entscheidend sind. Dabei konnten sowohl die intrinsischen Eigenschaften des NV-Zentrums als auch die Auswirkungen einer veränderten Anregungspolarisation der verwendeten Laser- und Mikrowellenquellen auf die untersuchten NV-Zentren überprüft und nachvollzogen werden.

Anhand der Untersuchung einer magnetischen Mikrostruktur wurde anschließend ein Verfahren entwickelt, wie mithilfe der Polarisations-eigenschaften des Anregungslasers und der Mikrowelle mit einem Ensemble von NV-Zentren Vektormagnetometrie betrieben werden kann. Im Gegensatz zu bisherigen Magnetfeldmessungen mit Defektensembles kann dabei auf ein externes Magnetfeld komplett verzichtet werden.

Im Experiment konnten Variationen der Feldstärke im Bereich von wenigen μT problemlos nachgewiesen werden. Die Grenzen beim Arbeiten mit Diamant als Volumenmaterial liegen dabei in der limitierten räumlichen Auflösung durch das optische Beugungslimit, da alle NV-Zentren innerhalb des gerasterten Fokus der Anregung einen Signalbeitrag liefern. Daher wurden weitere Entwicklungsschritte geleistet, um diese Begrenzung zu umgehen.

Die Anwendung einer Simulationssoftware, die auf der Methode der finiten Elemente basiert, hat die Berechnung der Feldverteilung von komplexen Antennen-geometrien ermöglicht. Der Vergleich mit experimentellen Ergebnissen durch den Einsatz von NV-Zentren als Mikrowellensensor zeigt die Zuverlässigkeit der Simulationen. Damit erhält man die Möglichkeit, für alle weiteren Experimente eine gemäß den entsprechenden Anforderungen optimierte Antenne zu entwickeln.

Das Kapitel 5 zur Bearbeitung von Diamant zeigt, wie in Kombination von extern durchgeführter Stickstoffimplantation und innerhalb der Arbeitsgruppe durchgeführ-

ter Lithografieprozesse eine räumliche Einschnürung der NV-Zentren-Verteilung erreicht werden kann. Dies hebt die Begrenzung der räumlichen Auflösung durch das Beugungslimit komplett auf. Weitere Schritte der Prozessierung erlauben es, komplette Nanostrukturen aus Diamant zu erhalten, die als Messsonde in einer Rasterkraftmessung dienen können und gleichzeitig ein optisches NV-Lumineszenzsignal liefern.

Ein Mikroskop, welches die Kombination aus Rasterkraft- und konfokaler Mikroskopie erlaubt, wurde in Kooperation mit externen Firmen entworfen und in Betrieb genommen. Die Ergebnisse von Kapitel 6 zeigen den Erfolg der Entwicklung. Die Möglichkeiten zu einer nm-genauen Positionierung eines Sensors und einer zu untersuchenden Probenoberfläche zueinander, zur Durchführung von optisch detektierten Magnetfeldresonanz-Messungen und der Rasterkraftsignalverarbeitung bei tiefen Temperaturen sind in einem einzigen Aufbau kombiniert. Auch die Eignung der zuvor entwickelten Nanostrukturen aus Diamant als Rasterkraftsonde konnte an diesem Mikroskop demonstriert werden.

Verschiedene Fortführungen der in dieser Arbeit verfolgten Entwicklungsansätze versprechen eine weitere Verbesserung der bisher erzielten Ergebnisse.

Die Erkenntnisse der Experimente zum Thema Antennenentwicklung in Kapitel 4 und der Mikrowellenpolarisation in Kapitel 3.3 legen es nahe, weitere Bemühungen in die Entwicklung einer Leiterplattenantenne zu investieren, die in ihrer Gestalt und Charakteristik der bereits vorgestellten Antenne ähnelt, darüber hinaus allerdings eine zirkular polarisierte elektromagnetische Welle abstrahlt. In Kombination mit einer Vorzugsausrichtung der NV-Zentren in Diamant könnte so das Vorzeichen des Magnetfelds während der Magnetometrie gewonnen werden.

Unter Berücksichtigung der Ergebnisse zur Laserpolarisationsabhängigkeit von Diamanten mit unterschiedlichen kristallographischen Oberflächen in Kapitel 3.1, erscheint eine Anwendung der Prozessierung auf (110)- oder (111)-orientierte Diamanten als vielversprechend. Zudem zeigen verschiedene Simulationen der Emissionseigenschaften von NV-Zentren in (111)-orientierten Diamantnanosäulen auf ein erhöhtes Lumineszenzsignal gegenüber (100)-orientierten Nanosäulen hin [159].

Temperaturvariationen während der Rasterkraftmessungen verzerren die Resultate stark, da sich Probe und Sonde unkontrolliert lateral gegeneinander verschieben können. Der Einsatz des Aufbaus im kryogenen Umfeld sollte diese Verzerrungen minimieren, da einerseits eine genauere Kontrolle der Umgebungstemperatur möglich ist, andererseits die Ausdehnungskoeffizienten der verwendeten Materialien sich bei tiefen Temperaturen drastisch verringern. Die identischen Argumente lösen auch das Problem der starken Temperaturabhängigkeit der energetischen Position der Nullfeldresonanz der NV-Zentren.

Die in Kapitel 6.3 gezeigten Rasterkraftmessungen litten unter der Problematik einer zu weichen Verbindung zwischen Quarzoszillator und Diamantstruktur. Das verwendete Quarzrohr hatte einen Durchmesser von ca. $d = 15\mu\text{m}$ bei einer Länge von über 1.5 mm. Die Vermutung liegt nahe, dass ein Wechsel zu dickeren Durchmessern,

zu kürzeren Längen oder die Kombination von beiden die Gesamtstruktur insgesamt erheblich versteifen sollte. Dadurch sollte die Durchführung der Rasterkraftmessungen deutlich erleichtert und die Messzeit für eine Aufnahme drastisch verkürzt werden können.

Die Versteifung der Messspitzenkonstruktion ist für den Einsatz der Diamantstrukturen bei tiefen Temperaturen wohl elementar. Eine zu flexible Rastersonde könnte vom Strom des flüssigen oder gasförmigen Heliums leicht beeinflusst werden. Vorstellbare Auswirkungen sind eine Biegung der Sonde oder eine zusätzliche Schwingung. Beide Effekte würden das Messsignal massiv beeinträchtigen.

Eine Umgebung mit flüssigem Helium kann einen weiteren großen Vorteil für die Rasterkraftmagnetometrie bieten. Der Abstand zwischen Oberfläche und Messsonde, innerhalb dessen die van-der-Waals-Kräfte wirken, beträgt unter normalen Umgebungsbedingungen (Luft oder Vakuum) nicht mehr als 100 nm. Bei größeren Abständen ist daher keine nm-genaue Positionierung der Sonde zur Oberfläche mehr möglich, sodass der Bereich, in dem eine positionsgenaue Vermessung eines Magnetfelds möglich ist, auf eine dünne Schicht direkt oberhalb der Probenoberfläche begrenzt ist.

In reibungsfreien Flüssigkeiten wie suprafluidem Helium verändert sich jedoch die effektive hydrodynamische Masse eines Körpers bei der Annäherung an eine ruhende Oberfläche bereits im Abstand von mehreren 100 μm [220]. Da sich diese Änderung der Masse auch auf die Resonanzfrequenz eines Quarzoszillators während einer Rasterkraftmessung auswirkt [221], könnte so beinahe der komplette Halbraum oberhalb der Probe mit nm-genaue Abstandskontrolle untersucht werden.

Appendix

A.1 Versuchsaufbau für Mikrophotolumineszenzmessungen

Die experimentellen Daten der Kapitel 2 bis 5 wurden am hier beschriebenen Versuchsaufbau aufgenommen. Der Aufbau lehnt sich schematisch stark an andere Aufbauten zum gleichen Thema an [222, 223]. Die Auswahl und Zusammenstellung der Komponenten, deren Integration und Ansteuerung sowie die Datenaufnahme und -verarbeitung wurden jedoch in kompletter Eigenregie erstellt und durchgeführt.

Als Lichtquelle dient ein Dioden-gepumptes Festkörperlasersystem der Fa. *Laser-glow Techn.* mit der Emissionswellenlänge von 532 nm. Die maximale Ausgangsleistung beträgt etwas mehr als 100 mW und kann über einen Drehregler an der Steuereinheit des Systems eingestellt werden.

Da Lasersysteme ihre höchste Leistungs- und Polarisationsstabilität im Bereich der maximalen Ausgangsleistung erreichen, empfiehlt sich jedoch die Leistungsregelung über ein im weiteren Strahlengang eingebrachtes Graufilterrad vorzunehmen. Dabei kann die Leistung in einem Bereich von etwa 40 dB variiert werden.

Die Modulation der Anregung erfolgt über die Beugung des Laserstrahls in einem akustooptischen Modulator (AOM) der Fa. *Crystal Techn.* (heute *Gooch and Housego*), ausgelegt für den Wellenlängenbereich von 488 nm bis 532 nm (AOM 3200-146). Der Piezokristall des Modulators wird von einem Wechselfeld mit einer Frequenz von 200 MHz getrieben, welches von einem Oszillator erzeugt wird (AODR-1200-AF-DIF, in Bild A.1 nicht dargestellt), der über ein TTL-Signal angesteuert werden kann.

Eine Linse fokussiert den Laserstrahl auf die Apertur des AOM. Eine weitere Linse hinter dem AOM kollimiert den Laserstrahl wieder. Eine Irisblende hinter dieser Linse wird so im Strahlengang positioniert, dass sie nur die erste Beugungsordnung transmittiert und alle weiteren Ordnungen blockiert. Auf diese Weise können sowohl minimale Laserpulsdauern von etwa 20 ns als auch eine cw-Anregung eingestellt werden.

Bei der Wahl der Linse vor dem AOM ist die Ausdehnung des Piezokristalls entlang der Ausbreitungsrichtung des Lasers zu berücksichtigen. Eine kurze Fokusslänge erzeugt zwar einen kleinen Strahldurchmesser in der Fokusebene. Allerdings führt die hohe Divergenz des kegelförmig fokussierten Strahls an den Oberflächen des Piezokristalls zu einem größeren Strahldurchmesser. Dies führt zu einer langsam ansteigenden Flanke des Lichtpulses, da die Schallwelle im Kristall länger braucht, um sich

über den gesamten vom Laserstrahl abgedeckten Bereich auszubreiten. Im Aufbau ist daher eine Linse mit der Fokusslänge $f = 20\text{ cm}$ verwendet.

Die Anordnung entspricht dem Single-Pass-Schema für die Verwendung von AOM. Das häufiger verwendete Double-Pass-Schema hat im Vergleich die Vorteile der höheren Modulationstiefe und der identischen Strahlwege für die nullte und erste Beugungsordnung hinter der AOM-Strecke. Dafür führen die unterschiedlichen Ankunftszeiten des einlaufenden und rückläufigen Strahls allerdings zu leichten Verzerrungen der Laserpulsform bei der Erzeugung von sehr kurzen Lichtpulsen. Zudem wird die Komplexität des Aufbaus dadurch erhöht.

Eine $\lambda/2$ -Platte kann die Polarisationsachse des einfallenden Laserstrahls um jeden beliebigen Winkel θ in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Strahls drehen. Über einen motorisierten, PC-gesteuerten Rotator kann der Winkel stufenlos mit einer Genauigkeit von $\Delta\theta < 1^\circ$ eingestellt werden.

Wegen der Konfokalität des Aufbaus muss ein Strahlteiler die Anregung in den Detektionspfad einkoppeln. Hierzu wurde ein $R = 33\%:T = 67\%$ -Membranstrahlteiler gewählt.

Dieser Strahlteiler eröffnet die Möglichkeit, optional im Anregungspfad ein CMOS-Kamerasystem einzubringen, mit dem die Überprüfung der Fokusgröße, Weitfeldaufnahmen der Probenoberfläche und Beobachtung der PL-Signalstärke einfach möglich sind.

Der vom Strahlteiler zur Probe abgelenkte Laserstrahl wird anschließend von einem Mikroskopobjektiv der Fa. *Mitutoyo* fokussiert. Der Strahldurchmesser ist dabei auf die Apertur des Objektivs angepasst. Das gewählte Objektiv NIR-HR-100x ist für den Wellenlängenbereich der Lumineszenz angepasst, und erreicht daher bei der Wellenlänge des Anregungslaser nicht seine optimalen Spezifikationen. Dennoch kann der Laser problemlos auf Durchmesser von $< 1\ \mu\text{m}$ fokussiert werden, wie das Abbild der PL einer implantierten Diamantnanosäule mit einem Durchmesser von 70 nm in Bild A.2 (a) demonstriert.

Das Objektiv zeichnet sich außerdem durch die Kombination von seinem außerordentlich hohen Arbeitsabstand von 10 mm bei der beachtlichen Numerischen Apertur von $NA = 0.7$ aus, welche objektseitig viel Spielraum für die Montage der Proben oder Antennen lässt.

Die Probe bzw. der Diamant ist auf einem 3D-Positioniersystem der Fa. *attocube* montiert. Da bei Raumtemperatur gearbeitet wird, kann der Diamant mit jedem handelsüblichen Klebstoff befestigt werden. Wenn die exakte Position des Diamanten relativ zur Oberfläche, auf die er geklebt werden soll unkritisch ist, kann der Klebstoff *Fixogum* verwendet werden, da dieser rückstandsfrei mechanisch wieder abgelöst werden kann. Muss die Probe exakt ausgerichtet werden, empfiehlt sich die Verwendung von *Pritt*, da dieser kontrollierter aufgebracht werden kann.

Diamant im hier verwendeten Reinheitsgrad ist nahezu völlig transparent bei der verwendeten Anregungswellenlänge. Daher ist darauf zu achten, dass der Klebstoff

A.1 Versuchsaufbau für Mikrophotolumineszenzmessungen

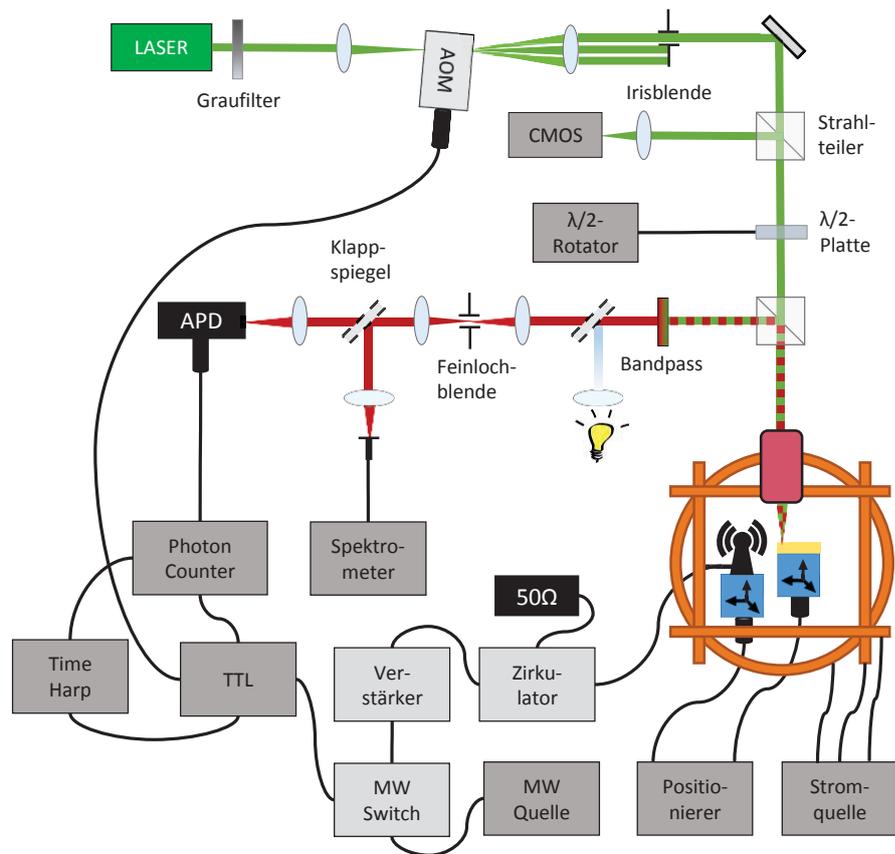


Bild A.1: Schematische Übersicht über den Mikrophotolumineszenzaufbau. Die in dunkelgrau dargestellten Einheiten können direkt über den PC angesteuert werden. Hellgraue Einheiten verarbeiten die eingehenden Signale ohne weiteren Bedarf an Ansteuerung

A.1 Versuchsaufbau für Mikrophotolumineszenzmessungen

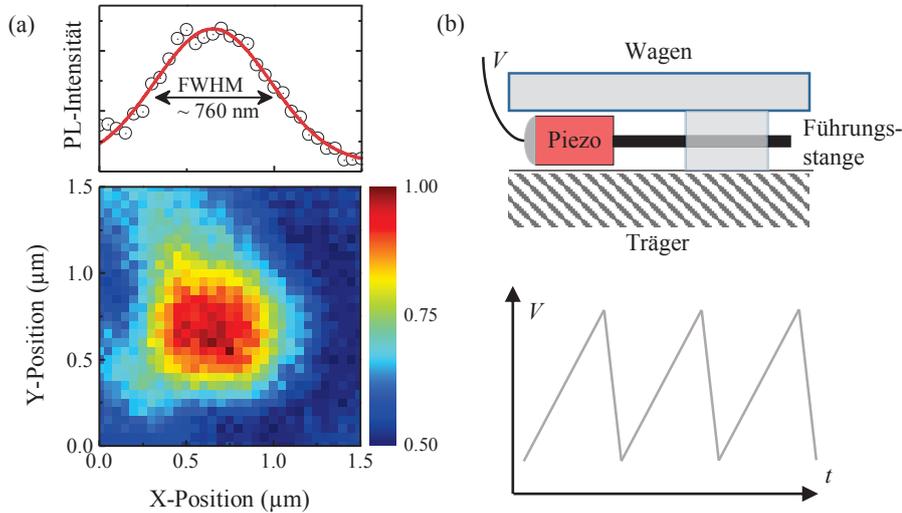


Bild A.2: (a) Laterales, normiertes PL-Profil einer 70 nm-Nanosäule in 1D und 2D. (b) Schematische Darstellung des Aufbaus und der Funktionsweise eines Nanopositionierers nach dem Slip-Stick-Verfahren

nicht fluoresziert, da andernfalls ein erhebliches Störsignal von der Rückseite des Diamanten aufgesammelt werden kann. Wenn möglich, sollten vor allem dünne Diamantproben nicht auf einer reflektierenden Oberfläche montiert werden. Andernfalls wird der Laser zurück in die Probe reflektiert. Dies kann den Kontrast zwischen Anregungszentrum und Bereichen abseits des Zentrums verringern, sowohl in PL-Detektion als auch in der Strahldiagnose. Es empfiehlt sich folglich die Verwendung von indirekten Halbleitersubstraten wie Silizium als Montageflächen.

Das für ODMR-Messungen notwendige Mikrowellenfeld kann durch koplanare Wellenleiter, einzelne Kabel oder Antennen an den Diamanten herangeführt werden. Hierfür steht ein zweites 3D-Positioniersystem zur Verfügung, sodass ggf. Antenne und Diamant unabhängig voneinander bewegt werden können.

Somit ergeben sich insgesamt sechs zu kontrollierende Achsen des gesamten Positioniersystems. Die Positionierer arbeiten nach dem Prinzip des Slip-Stick-Verfahrens [224]. Für jede Richtung existiert eine Positioniereinheit, die schematisch aus einem Träger, einem an eine Spannungsversorgung angeschlossenen Piezokristall, einer Führungsstange und einem Wagen besteht (siehe Bild A.2 (b)). Die Führungsstange ist fest mit dem Piezokristall verbunden. Eine langsame Ausdehnung des Piezokristalls verschiebt den Wagen, da in diesem Fall die Reibung zwischen Führungsstange und Wagen größer als zwischen Träger und Wagen ist. Während des schnellen Zusammenziehens des Piezokristalls hingegen ist die Haftreibung zwischen Träger und Wagen höher, sodass die Position des Wagens zum Träger unverändert bleibt. Ein Sägezahnprofil der an den Piezokristall angelegten Spannung führt so zu einer kon-

tinuierlichen Bewegung des Trägers gegenüber dem Wagen. Der Spannungsanstieg geschieht dabei auf der ms-Zeitskala, der Abfall hingegen auf der μ s-Skala.

Dadurch können Genauigkeiten der Positionierung von bis zu 10 nm erreicht werden, bei Verfahrenswegen von insgesamt bis zu 2 cm.

Da zwei der sechs Achsen über einen optischen Auslesemechanismus verfügen, kann die Position in zwei Raumrichtungen über ein Feedback kontrolliert eingestellt werden. Entsprechend werden zwei der sechs Achsen von einer gesonderten Steuereinheit betrieben.

Die Positionierer sind im Zentrum eines dreifachen Helmholtzspulenpaares der Fa. *MicroMagnetics* platziert. Dadurch können statische Magnetfelder in beliebige Raumrichtungen erzeugt werden. Da die Durchmesser der Spulen verschiedener Raumrichtungen variieren, weichen die maximal erreichbaren Feldstärken leicht voneinander ab. Sie betragen etwa 3.2 mT bis 4.5 mT.

Die Spulen werden von einer Stromquelle der Fa. *GS* versorgt. Die Steuerung der Stromquelle erfolgt durch Anlegen eines analogen Spannungssignals, dessen Signalstärke proportional zum Strom ist, der in den Spulen angelegt wird. Das Analogsignal wird durch eine PCI-Steckkarte geliefert, die als D/A-Wandler dient.

Zur Mikrowellenerzeugung wurde die Signalquelle SG384 der Fa. *Stanford Research* erworben, die Wechselspannungen bis zu einer Frequenz von 4 GHz mit einer Ausgangsleistung von bis zu 13 dBm bereitstellt.

Um das Mikrowellenfeld ähnlich wie die optische Anregung sowohl im cw-Modus als auch in gepulster Form zur Verfügung zu haben, wird das Signal der Quelle auf einen MW-Switch gegeben, in dem über ein TTL-Signal gesteuert werden kann, auf welchen der zwei vorhandenen Ausgänge das Signal gegeben werden soll. Die Schaltzeiten des Switches sind dabei so klein, dass diese die MW-Pulslänge in vernachlässigbarem Ausmaß beeinflussen.

Ein nachgeschalteter 30 dB-Verstärker erhöht die MW-Leistung bis zu einer Grenzleistung von etwa 35 dBm.

Zwischen Verstärker und Antenne sollte ein MW-Zirkulator eingebaut sein. Dieses Bauteil verhindert, dass Reflexionen der Mikrowelle an der Antenne auf den Ausgang des Verstärkers zurückgegeben werden, die dort unter Umständen Schaden anrichten können. Stattdessen werden die Reflexionen auf einen $50\ \Omega$ -Abschlusswiderstand für das entsprechende Leistungsregime gegeben. Da so alle Reflexionen aus der Leitung gefiltert werden, erhöht ein Zirkulator auch die Modulationstiefe der angelegten Pulssequenzen.

Die Lumineszenz der Diamanten wird durch das Mikroskopobjektiv eingesammelt und hinter dem Strahlteiler durch einen Bandpassfilter der Fa. *AHF Analysetechnik* vom Laserlicht gereinigt. Die Abschwächung des Laserlichts durch den verwendeten Filter F49-691 ist mit 60 dB angegeben. Im Experiment war kein transmittiertes Laserlicht mehr mess- oder sichtbar.

Hinter dem Bandpass bilden zwei Linsen und eine in deren gemeinsamer Fokusebe-

ne positionierte Lochblende einen räumlichen Filter für die Lumineszenz. Die erste Linse erzeugt ein Bild der Fokusebene des Mikroskopobjektivs, welche um das Verhältnis V der Fokuslängen von Linse und Objektiv vergrößert ist (in diesem Fall $V = 15$). Die Lochblende mit dem Durchmesser von $d = 15\ \mu\text{m}$ sorgt dafür, dass nur Licht aus einem Bereich mit dem Durchmesser von $d = 1\ \mu\text{m}$ in der Probe transmittiert wird. Die axiale Auflösung des Aufbaus wird durch die Blende zwar ebenfalls erhöht [225], beträgt aber wie in Bild 5.1 (b) ersichtlich immer noch ein Vielfaches der lateralen Auflösung. Die zweite Linse kollimiert das transmittierte PL-Signal wieder.

Durch das Einbringen eines Klappspiegels kann nach dem räumlichen Filter zwischen zwei Detektionsmodi gewählt werden.

So kann das Signal auf den Fasereingang eines mobilen, USB-gesteuerten Gitterspektrometers von *OceanOptics* gegeben werden, in welchem ein Peltier-gekühlter CCD-Chip als Detektor für Wellenlängen von 350 nm bis 1100 nm verwendet wird. Die Auflösung des Spektrometers ist mit etwa 2 meV bis 3 meV im für NV-Zentren relevanten Spektralbereich vergleichsweise gering, jedoch im vorliegenden Fall völlig ausreichend.

Für die meisten Experimente wird das Licht jedoch auf eine Lawinenphotodiode (*engl.* Avalanche Photo Diode) geführt. Das gewählte Model SPCM-AQHR-14 der Fa. *Excelitas* hat eine Dunkelzählrate von weniger als 100 cps und verfügt über einen so hohen dynamischen Bereich, dass sowohl Messungen an schwach leuchtenden Einzelphotonemittern als auch an hell leuchtenden Ensembles von Emitttern ohne weiteres möglich sind.

Eintreffende Photonen lösen, wenn detektiert, einen Spannungspuls aus. Dies passiert auf einer Zeitskala von weniger als 1 ns, sodass die Auswirkungen auf die Zeitauflösung des gesamten Setups vernachlässigbar sind.

Die Spannungspulse werden auf den Eingang eines Zwei-Kanal-Pulszählers gegeben, der üblicherweise als Photon Counter bezeichnet wird (SR400 von *Stanford Research*). Der Zähler kann sowohl im cw-Modus verwendet werden als auch im gepulsten Modus. In Letzterem gibt, ähnlich einem Boxcar-Averager, ein TTL-Trigger vor, dass ab einem bestimmten Zeitpunkt für einen bestimmten Zeitraum die ankommenden Spannungspulse in einem bestimmten Kanal gezählt werden sollen. Im anderen Kanal können dann z.B. die Spannungspulse ab einem anderen Zeitpunkt für einen bestimmten Zeitraum gezählt werden. Auf diese Weise können die Messergebnisse von verschiedenen Messfenstern innerhalb beliebig oft wiederholten Pulssequenzen akkumuliert werden, wie es bei den gepulsten ODMR-Messungen in Kapitel 2 notwendig ist.

Alternativ kann das Signal auch auf den Eingang eines Zeit-zu-Amplituden-Wandlers weiter gegeben werden. Der Wandler liegt in der Ausführung als PCI-Steckkarte vor (TimeHarp 200 der Fa. *PicoQuant*). Auf den zweiten Eingang des Wandlers kann dann ein TTL-Puls gegeben werden, der mit dem Signal des AOM synchronisiert ist. Der im Reverse-Start-Stop-Modus betriebene Wandler erstellt so ein Histogramm

der Zeitintervalle zwischen dem Signal des Anregungslasers und des Detektors. Das Histogramm entspricht dem zeitlichen Abklingen des Messsignals. Die IRF des Systems wird dabei maßgeblich von der minimalen Laserpulslänge bestimmt, die mit dem AOM einstellbar ist.

Die für die zeitliche Synchronisation von AOM, MW-Switch und Photonzähler benötigten TTL-Pulszüge werden von einem als PCI-Steckkarte ausgeführten TTL-Pulse/Pattern-Generator der Fa. *SpinCore* erzeugt. Die Karte hat vier BNC-Ausgänge und während einer Sequenz kann das Signal auf jedem einzelnen Kanal individuell gestaltet werden. Die Taktfrequenz der Karte beträgt 500 MHz, sodass der Pegel auf den Kanälen alle 2 ns geändert werden kann. Damit lassen sich einerseits die unterschiedlichen Einsatzpunkte der Geräte berücksichtigen, die sich z. B. aus der unterschiedlichen MW-Pulsdauer während der Rabi-Messungen ergeben.

Andererseits können auch die verschiedenen Ansprechzeiten der Geräte ausgeglichen werden: Während der Photonzähler beinahe instantan nach dem Eintreffen des Triggerpulses reagiert, benötigt der MW-Switch etwa 30 ns zum Schalten. Der größte Versatz entsteht jedoch im AOM. Etwa 600 ns vergehen, bis der AOM-Treiber nach dem Eintreffen des Triggers das Signal an den AOM-Kopf weitergeleitet hat, und sich dort die Schallwelle im Kristall soweit ausgebildet hat, bis der Laserstrahl abgelenkt wird.

Die individuelle Programmierung der vier Kanäle erlaubt die Verzögerung der einzelnen Triggersignale gegeneinander. Bei allen Umbauten des Aufbaus, die den Strahlengang des Lasers oder die verwendeten Kabellängen verändern, ist entsprechend eine Anpassung der genauen Verzögerungszeiten vorzunehmen.

Alle in Bild A.1 in dunkelgrau dargestellten Geräte können über denselben PC angesteuert werden. Dafür wurde mit der Entwicklungsumgebung *LabView* ein Programm verfasst, in dem alle Geräte so integriert sind, dass sie beliebig zueinander in Messungen kombinierbar sind. Das Programm ist außerdem so strukturiert, dass weitere Geräte problemlos hinzugefügt werden können. Einzige Ausnahme dafür bildet die Software für das USB-Kompaktspektrometer, welche bislang noch nicht integriert ist. Daher wird in diesem Fall noch die vom Hersteller angebotene Software verwendet.

Darüber hinaus ist der Aufbau so angelegt, dass durch kleine Modifizierungen prinzipiell auch das Arbeiten mit einzelnen NV-Zentren möglich sein sollte. Um mit der niedrigeren Signalstärke von einzelnen Zentren besser zurecht zu kommen, empfiehlt sich der Austausch des 33% : 67%-Strahlteilers gegen einen dichroitischen Spiegel. Damit kann ohne einen Austausch der Lichtquelle sowohl die Anregungsintensität um einen Faktor 3 als auch die Detektionssensitivität um einen Faktor 1.5 erhöht werden. Eine gleichzeitige Beobachtung von Laserspot und PL-Signal durch die CMOS-Kamera wird in dieser Versuchsgeometrie zwar prinzipiell unmöglich gemacht, aufgrund des schwachen PL-Signals einzelner Zentren ist dies allerdings auch in anderen Geometrien nahezu ausgeschlossen.

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

Das Einbringen eines 50 % : 50 %-Strahlteilers vor den Detektor sowie einer zweiten APD-Detektoreinheit in den reflektierten Strahlengang ermöglicht in Kombination mit der *TimeHarp*-Karte das Durchführen von Autokorrelationsmessungen der Lumineszenz. In diesem Hanbury-Brown-Twiss-Verfahren lässt sich überprüfen, ob die Lumineszenz von Einzelphotonquellen, also einzelnen NV-Zentren emittiert wird.

Eine Umrüstung des Aufbaus vom Freistrahlsystem auf ein fasergekoppeltes System würde viele der Optiken im Anregungs- und Detektionspfad obsolet machen. Die Reflexionsverluste an den Grenzflächen würden so minimiert werden und die Signalstärke weiter erhöht.

Da an diesem Aufbau jedoch zusätzlich Versuche von Studenten im Rahmen des Physikalischen Praktikums für Fortgeschrittene durchgeführt werden, wurde aus didaktischen Gründen ein Freistrahlsystem gewählt. Dennoch sollten bei zukünftigen Modifizierungen des Aufbaus ein Wechsel zu fasergekoppelten Detektoren in Betracht gezogen werden, da hier eine Verbesserung der Sensitivität ohne einen signifikanten Verlust der Anschaulichkeit der Physik erreichbar sein sollte.

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

Die in Kapitel 6 dargestellten Daten sind die ersten Ergebnisse, die am Aufbau zur Kombination von ODMR- und Rastersondenmessungen entstanden sind. Dieser Aufbau ist in seiner Form bislang einzigartig und einzelne Bauteile davon das Resultat einer koordinierten Zusammenarbeit unterschiedlicher externen Firmen.

Die Komponenten dieses auch für tiefe Temperaturen geeigneten Aufbaus lassen sich gemäß ihrer Verwendung in drei unterschiedliche Gruppen einteilen. Dies sind neben den für die ODMR-Messungen notwendigen Komponenten die Instrumente für die Rastersondentechnologie und die Bestandteile der kryogenen Umgebung. Bild A.3 gibt einen schematischen Überblick über die Kombination der drei Gruppen.

Das Kernstück des Aufbaus bildet ein auf Piezopositionierern und -scannern basierendes Rastersondenmikroskop der Fa. *attocube*. In einer Halterung aus Titan werden alle Funktionseinheiten des Mikroskops zu zwei Türmchen kombiniert, auf deren Spitze die zu untersuchende Probe und die Messspitze montiert werden.

In beiden Türmchen sorgen zunächst drei nach dem Slip-Stick-Verfahren arbeitende Piezopositionierer für die Grobjustierung von Probe bzw. Messspitze. Die Positionierer haben jeweils einen Verfahrweg von $\Delta r = 2.5 \text{ mm}$ und verfügen über einen resistiven Auslesemechanismus. Damit kann die Position bei Raumtemperatur bis auf 50 nm Genauigkeit reproduzierbar eingestellt werden, bei LHe-Temperaturen bis auf etwa 10 nm. Dabei ist zu beachten, dass der Auslesemechanismus immer nur die aktuelle Verschiebung zwischen Wagen und Träger angibt.

Allerdings wurde bereits bei der Abnahme des Geräts festgestellt, dass bei Bewe-

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

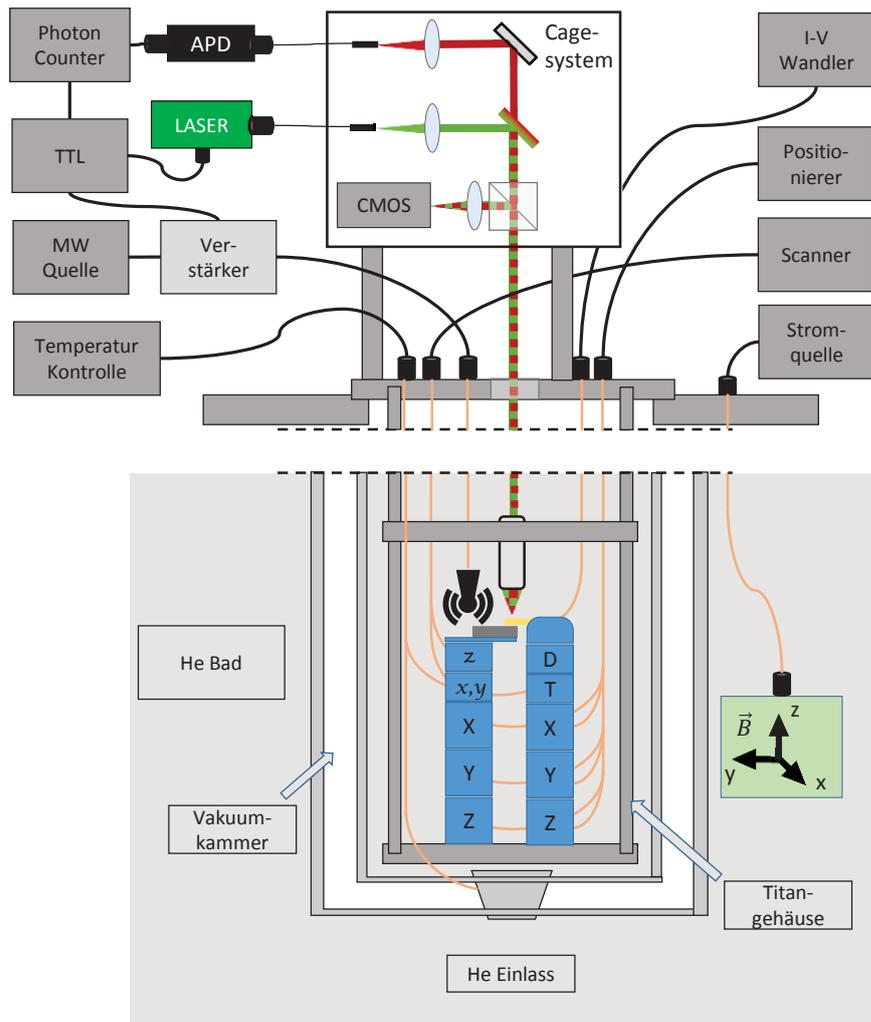


Bild A.3: Schematische Übersicht über den Tieftemperaturaufbau. Die in dunkelgrau dargestellten Einheiten können direkt über den PC angesteuert werden. Nicht gezeigt sind verschiedene Graufilter und Bandpässe im optischen Pfad, die in ihrer Funktion identisch zu denen aus Appendix A.1 sind

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

gung der Z-Positionierer die Türmchen leicht verkippen und daher die Position der Probe und der Messspitze eine zusätzliche Verschiebung in X-Richtung erfahren. Bei Umkehr der Bewegungsrichtung der Z-Positionierer dreht sich auch die Richtung der Verkipfung um.

Dies schränkt die Genauigkeit der Positionierung erheblich ein. Immer wenn eine bestimmte Position der Probe oder Messspitze mit hoher Genauigkeit wiederholt eingestellt werden soll, muss daher darauf geachtet werden, die Endposition aus der gleichen Richtung her anzufahren.

Im Turm, auf dessen Oberseite die Probe montiert wird, ist nachfolgend die eigentliche Scaneinheit montiert. Der maximale Scanbereich in x - und y -Richtung beträgt $35\ \mu\text{m}$ bei Raumtemperatur und $15\ \mu\text{m}$ bei LHe-Temperaturen. Für die z -Richtung gelten Werte von etwa $4\ \mu\text{m}$ bei Raumtemperatur und $2\ \mu\text{m}$ bei tiefen Temperaturen.

Wie bereits in Kapitel 6 angesprochen, fließt nur die z -Position als Stellgröße in den Regelkreis der elektronischen Steuerung ein, während die x - und y -Positionen einzig durch die Spannungen zur Ausdehnung der Piezokristalle vorgegeben sind. Dadurch können die bereits in Kapitel 6 beobachteten Verzerrungen entstehen. Bild A.4 zeigt nochmals die Verzerrungen über den gesamten erreichbaren Scanbereich.

Die Scaneinheit kann auch auf den Turm der Messspitze montiert werden. In der absoluten Mehrzahl der geplanten und vorstellbaren Experimente soll allerdings die Position der Messspitze relativ zur Laseranregung konstant sein, um eine konstante Signalintensität zu erhalten. Daher wird vor der eigentlichen Messung die Messspitze nur durch die Grobpositionierer in den Fokus der Anregung gebracht und während der Rastermessung stattdessen die Probe bewegt.

In den Turm der Messspitze ist außerdem ein Sensor zur Temperaturkontrolle integriert (*LakeShore* Cernox-RTD). Direkt unterhalb der Messspitze ist ein weiterer Piezokristall montiert. Dieser dient zur Anregung der Schwingung der Messspitze. Dazu kann an den Kristall eine Spannung mit einer Frequenz im kHz-Bereich angelegt werden. Der Kristall schwingt dann mit genau dieser Frequenz und die Schwingung überträgt sich auf die Quarzstimmgabel. Auf die beiden Arme der Stimmgabel sind metallische Kontakte aufgebracht.

Da Quarz selbst piezoelektrisch ist, tritt bei der Schwingung innerhalb der Kristallstimmgabel eine Verschiebung des positiven und des negativen Ladungsschwerpunkts zueinander auf. Die Frequenz der entstehenden Spannung ist die gleiche wie die der Schwingung. Üblicherweise kann die Spannung über die metallischen Kontakte abgegriffen und anschließend verstärkt werden. Das auslaufende Signal des Spannungsverstärkers kann dann für die weitere Detektion und Abstandsregelung verwendet werden.

Da der beschriebene Aufbau auch für LHe-Temperaturen geeignet sein soll, empfiehlt es sich nicht, den Verstärker im Probenraum zu positionieren. Die Kennlinien der im Verstärker verwendeten Transistoren verändern sich zwischen $4\ \text{K} - 273\ \text{K}$ maßgeblich, sodass eine Abstimmung des Verstärkers nicht trivial ist. Die Signalver-

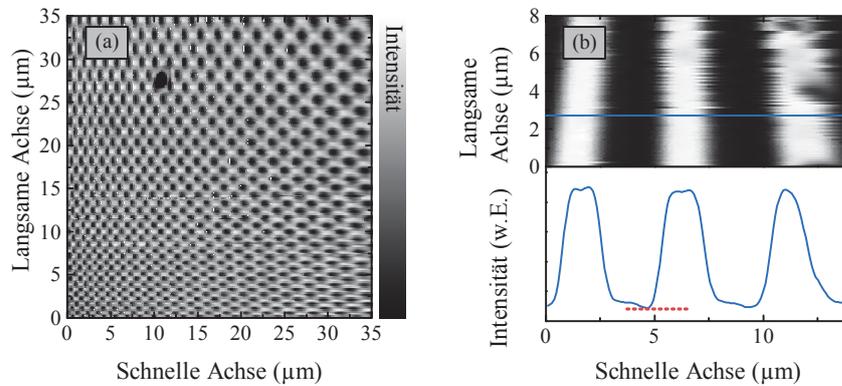


Bild A.4: (a) Zweidimensionale Intensitätskarte der optischen Reflexion im maximalen Rasterbereich. Man erkennt wie bereits in Bild 6.2 und Bild 6.3 die Verzerrungen durch die Nichtlinearität der Piezoscanner. (b) Zweidimensionale Intensitätskarte der optischen Reflexion an einer Streifenprobe zur Bestimmung des optischen Auflösungsvermögens. In blau: Profil eines lateralen Schnitts durch die 2D-Karte mit angepasster Gaußscher Fehlerfunktion (rot)

stärkung soll daher außerhalb des Kryostaten erfolgen.

Die Länge des elektrischen Leiters zwischen Signalquelle und Verstärker beträgt allerdings geometriebedingt mehr als $l = 1$ m, sodass die Kapazität und der Widerstand des Leiters das niedrige Spannungssignal der Stimmgabel erheblich dämpfen würden. Aus diesem Grund wird im beschriebenen Aufbau statt eines Spannungs- ein Transimpedanzverstärker verwendet. Im extrem niederohmigen Eingang des Verstärkers (*Femto* DLPCA-200) werden die beiden metallische Kontakte quasi kurzgeschlossen, damit ein Strom fließen kann, der die Verschiebung der Ladungsschwerpunkte aufgrund der Schwingung kompensieren will. Da die Verschiebung der Ladungsschwerpunkte mit der gleichen Frequenz der Schwingung erfolgt, oszilliert auch die Stromstärke mit dieser Frequenz. Das Ausgangssignal des Transimpedanzverstärkers ist daher eine dem Strom und damit der Auslenkung proportionale Spannung.

Das so verstärkte Signal wird über ein Lock-In-Detektionsschema demoduliert, wobei die treibende Spannung des Piezokristalls als Referenzsignal dient. Wie bereits in Kapitel 6 erläutert, gibt das Ausgangssignal des Lock-Ins Aufschluss über die Stärke der auf die Stimmgabel wirkenden Kräfte und ermöglicht so die gewünschte genaue Abstandskontrolle zwischen Probenoberfläche und Messspitze.

Direkt oberhalb der beiden Türme befindet sich eine Halterung mit einer für LHe-Temperaturen geeigneten, asphärischen Linse. Die Linse hat eine Fokusslänge von $f = 1.68$ mm und eine numerische Apertur von $NA = 0.68$. Teilbild (b) von Bild A.4 zeigt das Reflexionsbild einer streifenförmigen Teststruktur. In einem lateralen Inten-

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

sitätsprofil kann an einer der Streifenkanten die optische Auflösung bestimmt werden. Dazu führt man eine Anpassung der Kante mit einer Gaußschen Fehlerfunktion $erf(x)$ durch:

$$I(x) = I_0 + erf\left(\frac{\sqrt{2}(x - x_0)}{\omega}\right) \quad (\text{A.1})$$

Dabei entspricht ω der Hälfte der Strahltaile im Fokus. Die Anpassung ergibt einen Wert von $2\omega = 0.992\ \mu\text{m}$. Die Halbwertsbreite $FWHM$ des Strahls ist mit ω über

$$2\omega = \frac{\sqrt{2}FWHM}{\sqrt{\ln 2}} \quad (\text{A.2})$$

verknüpft, sodass sich für die fokussierte Laseranregung eine Halbwertsbreite von etwa $FWHM \approx 0.8\ \mu\text{m}$ ergibt.

Da auch dieser Versuchsaufbau als Konfokalmikroskop ausgelegt ist, folgt der weitere Aufbau dem Grundprinzip aus Appendix A.1. Daher sind bei der Zusammenstellung der optischen und MW-Komponenten die Erfahrungen und Erkenntnisse, die beim Arbeiten mit dem Raumtemperaturaufbau gesammelt bzw. erworben wurden, soweit wie möglich eingebracht. So sind Photon Counter, MW-Signalquelle, TTL-Pulse/Patter-Generator, CMOS und APD baugleich zu den im Appendix A.1 beschriebenen Instrumenten.

Der Schwierigkeitsgrad ist allerdings dahingehend erhöht, dass die zu untersuchende Probe innerhalb eines Kryostaten liegt, der nur über einen optischen Zugang an seiner Oberseite verfügt, was ein Arbeiten auf einem optischen Tisch unmöglich macht.

Daher werden die Einheiten für die Anregung und die Detektion räumlich voneinander getrennt im Labor aufgebaut. Zur Überbrückung der Distanz wurde zunächst ein Strahlstabilisierungssystem genutzt, welches sich allerdings nicht bewährt hat. Stattdessen wurde ein optisches Cage-System (*engl.* für Käfig) entworfen, welches auf der Kryostatenoberseite montiert werden kann. In dieses Cage-System sind neben den Faseraus- bzw. -einkopplern auch sämtliche weitere optische Elemente integrierbar.

Dadurch ist der optische Pfad hinter den Faserkopplern starr mit dem Kryostaten verbunden. Eventueller Drift in der relativen Position zwischen Anregungslaser, Probe und Detektionseinheit ändert deshalb nur die Lage der Glasfaser im Raum und hat somit keinerlei Auswirkungen auf die Signalintensität.

Im Cage-System ist neben verschiedenen Graufiltern und Bandpässen ein dichroitischer Spiegel als Strahlteiler zwischen Anregungs- und Detektionspfad verwendet. Zudem kann über einen austauschbaren Strahlteiler eine optische Inspektion der Fokusebene vorgenommen werden. Durch mehrere einstellbare Umlenkspiegel im Cage-System kann die Strahlposition in der Fokusebene verändert werden, obwohl der Käfig starr mit dem Kryostaten verbunden ist.

Das System eröffnet durch seine Modularität die Möglichkeit, ohne großen Aufwand weitere optische Elemente wie bspw. ein $\lambda/2$ -Plättchen zur Kontrolle der Anregungspolarisation dem Aufbau hinzuzufügen.

Der Anregungslaser (*Omicron Laserage Phoxx* Diodenlaser, 515 nm) wird durch eine Single-Mode-Faser zum Cage-System geführt, um ein Gaußförmiges Strahlprofil hinter dem Auskoppler zu gewährleisten. Der Laser ist digital modulierbar, sodass das TTL-Signal des Pulsgebers direkt zur Erzeugung von Lichtpulsen beliebiger Länge genutzt werden kann (≈ 6 ns minimale Pulslänge).

Das PL-Signal wird in eine Multi-Mode-Faser eingekoppelt, die direkt mit dem Fasereingang der APD verbunden ist. Der größere Durchmesser von Multi-Mode-Fasern gegenüber der Single-Mode-Variante sorgt für einen niedrigeren Signalverlust bei der Übertragung von schwachen Signalen. Falls das Experiment zu einem bestimmten Zeitpunkt dahingehend geändert wird, dass man statt mit einem nanostrukturierten Diamanten mit unbearbeiteten Diamanten arbeitet, kann durch den Einsatz einer Single-Mode-Faser analog zur Lochblende aus Appendix A.1 direkt eine räumliche Selektion des Signals erhalten werden.

Alternativ kann in den Faserkoppler auch die Glasfaser des Kompaktspektrometers gekoppelt werden, falls man an der spektralen Form des Signals interessiert ist. Bild A.5 (a) zeigt die Aufnahme des PL-Spektrums einer 200 nm-breiten Diamantspitze im Versuchsaufbau.

Das MW-Feld wird hinter der Quelle zunächst wieder verstärkt (*Microwave Ampl. Ltd.*, Verstärkungsfaktor von 40 dB) und im Kryostaten über ein semirigides Koaxialkabel zum Ort der Probe geführt. Die Vorteile von semirigidem Kabeln sind ihre geringe Dämpfung des Signals und die Eignung für sehr tiefe Temperaturen. Das Kabel besteht aus rostfreiem Stahl, kupferplattiertem Stahldraht und Teflon als Dielektrikum. Zur Auskopplung der MW kann eine Antenne wie in Kapitel 4 genutzt werden.

Bei der Entwicklung des Kryostaten waren unterschiedliche Anforderungen zu beachten. Zur Manipulation der Proben soll ein Magnetfeld von mindestens $B = 400$ mT in jede Richtung anzulegen sein. Nach Abschalten des Magnetfelds soll die Remanenz des Systems außerdem vernachlässigbar sein (etwa $B_{Rem} < 0.1$ mT). Die Temperatur am Ort der Probe soll kontrolliert zwischen $T = 1.6$ K und $T = 270$ K einstellbar sein, wobei eine Standzeit von über 72 h bei LHe-Temperaturen gewährleistet sein muss.

Da im Zentrum des Feldes die komplette Positioniereinheit Platz finden und die Temperatur an diesem Ort einstellbar sein soll, muss das Magnetfeld von einer Kombination aus drei Paaren von supraleitenden Helmholtzspulen geliefert werden, die eine Bohrung mit ausreichendem Durchmesser besitzt. Die Wahl fiel daher auf ein Badkryostaten-System der Fa. *Scientific Magnetics*, welches an die zusätzlichen Anforderungen angepasst werden sollte. Die Geometrie des Systems wurde daher in enger Abstimmung miteinander entwickelt.

Die supraleitenden Spulen sind in einer Aluminiumstruktur verbaut und im äußeren

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

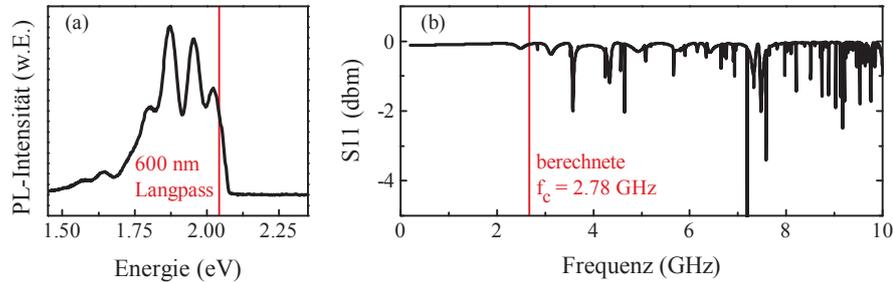


Bild A.5: (a) Im Rastersondenaufbau detektiertes PL-Signal der nanostrukturierten Diamant-AFM-Spitze aus Kapitel 6.3. (b) Simulationsergebnisse der Abstrahlcharakteristik der Antenne aus Kapitel 4.3 innerhalb eines metallischen Zylinders mit dem Durchmesser der Vakuumüberkanne. Die nach Gleichung 4.4 berechnete Grenzfrequenz des Zylinders beträgt $f_c \approx 2.78$ GHz

Heliumbad verankert. Die Bohrung der Struktur in Z-Richtung hat einen Durchmesser von $d = 76$ mm. Dies reicht aus, um darin eine zylinderförmige Vakuumüberkanne einzubringen, die eine Kontrolle der Temperatur am Ort der Probe erlaubt, ohne dass die Magnetfeldspulen die supraleitende Phase verlassen.

Die Vakuumüberkanne besteht aus der Probenkammer, die von einer Vakuumkammer umgeben ist. Die Vakuumkammer isoliert die Probenkammer gegen das Heliumbad. Der Durchmesser der Probenkammer ist an die Titanhalterung der Rastersondeneinheit angepasst und mit $d = 63.5$ mm so gewählt, dass die Grenzfrequenz des Zylinders unterhalb der Nullfeldresonanz der NV-Zentren liegt (siehe Bild A.5 (b)). An die Probenkammer ist eine Drehschieberpumpe angeschlossen, sodass durch einen Einlass flüssiges Helium aus dem Bad in die Probenkammer gesaugt werden kann.

Beim Entwurf des Einlassrohrs wurde darauf Wert gelegt, dass das Rohr badseitig oberhalb des Magneten endet. Dadurch wird verhindert, übermäßig viel flüssiges Helium abzusaugen, sodass der Heliumspiegel unter die Oberkante der Feldspulen fällt, und der Magnet durch die verringerte Kühlleistung unkontrolliert quenchet. Ein Sinter am badseitigen Ende verhindert das Ansaugen von Schmutzpartikeln, die das Rohr verstopfen könnten.

Über ein Nadelventil kann der Durchfluss durch das Rohr gesteuert werden. Der Einlass besteht aus einem beheizbaren Kupferblock, sodass die Temperatur des einströmenden Heliums über den Heizstrom und den Temperatursensor nahe der Probe geregelt werden kann. Durch eine Kombination aus Durchflussbegrenzung und Pumpleistung kann das Helium in der Probenkammer in die suprafluide Phase gebracht werden und eine minimale Temperatur von $T = 1.6$ K erreicht werden.

Für die Stromversorgung der Magnetspulen wird wieder auf eine Stromquelle der Fa. GS zurückgegriffen. Die Steuerung erfolgt dabei über eine serielle Schnittstelle.

Bild A.6 zeigt verschiedene Testmessungen der Funktionen des Magnetkryostaten.

A.2 Versuchsaufbau für kombinierte Photolumineszenz- und Rastersondenmessungen

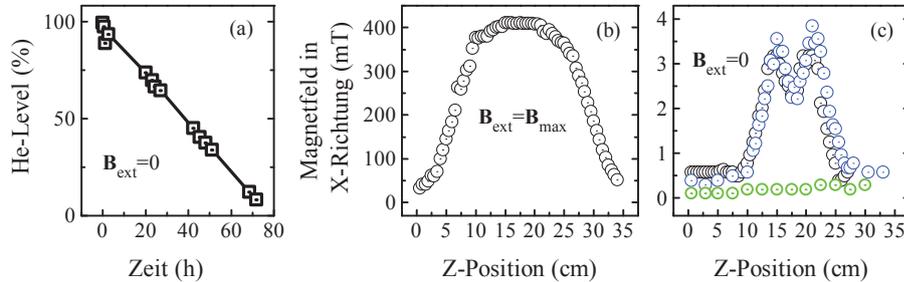


Bild A.6: (a) Abhängigkeit des Heliumfüllstands von der Standzeit. Die Vorgabe einer Standzeit von 72h wird erfüllt. (b) Vertikales Profil des Magnetfelds in X-Richtung bei maximal erlaubter Stromversorgung der Feldspule in X-Richtung. Die Vorgabe eines maximalen Feldes von $B_{max} > 400\text{mT}$ wird ebenfalls erfüllt. (c) Vertikales Profil des Magnetfelds in X-Richtung nach Abschalten der Stromversorgung (schwarz) und nach Quenchen der X-Spule (blau). Die Remanenz beträgt auf Höhe der beiden Z-Spulen jeweils etwa 3mT und verschwindet erst bei Temperaturen oberhalb der kritischen Temperatur T_C des Spulendrahts (grün, $T = 24\text{K}$)

Die Vorgaben bzgl. Standzeit und maximaler Magnetfeldstärke werden eingehalten. Allerdings hat sich gezeigt, dass zwischen der spezifizierten Remanenz ($\leq 0.1\text{mT}$) und den tatsächlich erreichten Werten der Remanenz ($\geq 3\text{mT}$) Abweichungen von mehr als einer Größenordnung bestehen. Die Remanenz kann auch nicht durch ein Quenchen der entsprechenden Spulen reduziert werden. Das verbleibende Feld verschwindet erst, wenn die oberhalb der Spulen gemessene Temperatur deutlich über der kritischen Temperatur der für die Helmholtzspulen verwendeten Supraleiter liegt. Dies und die Beobachtung, dass der Abstand zwischen den Maxima des Profils der Remanenz in Bild A.6 (c) gleich dem Abstand der beiden z-Spulen ist, deuten auf in den Spulen gefangenen oder induzierten Magnetfeldfluss als Ursache für die hohe Remanenz hin.

Da die endgültige Abnahme des Systems aufgrund dieser Nichterfüllung der Spezifikationen bis zum Zeitpunkt der Anfertigung der vorliegenden Arbeit verweigert wurde, waren bislang keine außer der in Kapitel 6.2 gezeigten Tieftemperaturmessung möglich. Zum gleichen Zeitpunkt wird der Magnet noch auf Ursachen der hohen Remanenz untersucht. Es gibt Anzeichen dafür, dass durch die Verwendung von anderen supraleitenden Filamenten die Spezifikationen nachträglich erfüllt werden können. Allerdings ist bislang nicht absehbar, bis wann mit einer Auslieferung und Endabnahme der korrigierten Magnetfeldspulen gerechnet werden kann.

Der komplette Kryostat mit dem optischen Aufsatz ist zur Isolierung gegen Vibrationen, die über den Laborboden in das System eingekoppelt werden könnten, auf einem Dämpfungstisch platziert. Im Tisch ist eine Vielzahl von Federn eingebaut, sodass man insgesamt eine negative Federkonstante erreicht (*Minus-k* 500BM-1). Um eine akustische Übertragung von Vibrationen durch den Lärm der angeschlossenen

Pumpen zu vermeiden, sind diese in einem anderen Raum positioniert. Die verbindenden Wellschläuche können weiterhin als Vibrationsüberträger wirken, allerdings besteht die Möglichkeit, die Schläuche durch eine Kombination aus Schwingungsdämpfern und flexiblen Plastikschläuchen zu unterbrechen, um so die Übertragung auf den Kryostaten zu minimieren.

A.3 Herleitung des Hamiltonoperators im rotierenden Bezugssystem

Im Folgenden werden die Details der Herleitung des Hamiltonoperators aus Gleichung 3.16 näher ausgeführt. Die Herleitung folgt dabei weitgehend Ref. [132]. Den Startpunkt bildet wieder der Spin-Hamiltonoperator mit zusätzlicher Berücksichtigung der Wechselwirkung mit dem externen Mikrowellenfeld:

$$\mathcal{H} = D\hat{S}_z^2 + \gamma B\hat{S}_z + \Omega\hat{\epsilon}e^{i\omega+\phi_g}\hat{S} + \text{herm.konj.} \quad (\text{A.3})$$

Wie gehabt, soll das Magnetfeld der Mikrowelle mit der Frequenz ω und der globalen Phase ϕ_g nur in der x- und der y-Richtung schwingen, sodass der Polarisationsvektor $\hat{\epsilon}$ weiterhin

$$\hat{\epsilon} = (1, e^{i\phi}, 0) \quad (\text{A.4})$$

lautet, und Ω als Skalar betrachtet werden kann. Die beiden Terme, die die Wechselwirkung mit dem Mikrowellenfeld beschreiben, lauten damit weiterhin

$$\mathcal{H}_{MW} = \Omega(\cos(\omega t)\hat{S}_x + \cos(\omega t + \phi)\hat{S}_y) \quad (\text{A.5})$$

mit den Spin Operatoren

$$S_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, S_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & -i & 0 \\ -i & 0 & -i \\ 0 & -i & 0 \end{bmatrix}. \quad (\text{A.6})$$

Zur besseren Beschreibung kann ein Wechsel des Bezugssystems vorgenommen werden. Dabei bietet sich das rotierende System (*engl.* rotating frame) des Mikrowellenfeldes an.

Das Feld rotiert dabei mit der Frequenz ω um die z-Achse. Diese Rotation kann durch den unitären Operator \hat{U} mit

$$\hat{U} = \begin{bmatrix} e^{i\omega t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{i\omega t} \end{bmatrix} \quad (\text{A.7})$$

beschrieben werden. Das bedeutet für die beiden transversalen Spinoperatoren S_x und S_y

$$\begin{aligned} \hat{U}^\dagger \hat{S}_x \hat{U} &= \begin{bmatrix} e^{-i\omega t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\omega t} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\omega t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{i\omega t} \end{bmatrix} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & e^{-i\omega t} & 0 \\ e^{i\omega t} & 0 & e^{i\omega t} \\ 0 & e^{-i\omega t} & 0 \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

$$\hat{U}^\dagger \hat{S}_y \hat{U} = \dots = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & -ie^{-i\omega t} & 0 \\ ie^{i\omega t} & 0 & -ie^{i\omega t} \\ 0 & ie^{-i\omega t} & 0 \end{bmatrix}. \quad (\text{A.9})$$

Die einzelnen Terme des Hamiltonoperators \mathcal{H}_{MW} in Gleichung A.5 ergeben sich entsprechend zu

$$\begin{aligned} \Omega \cos(\omega t) \hat{U}^\dagger \hat{S}_x \hat{U} &= \Omega \frac{1}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & e^{-i\omega t} & 0 \\ e^{i\omega t} & 0 & e^{i\omega t} \\ 0 & e^{-i\omega t} & 0 \end{bmatrix} \\ &= \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & 1 + e^{-2i\omega t} & 0 \\ 1 + e^{2i\omega t} & 0 & 1 + e^{2i\omega t} \\ 0 & 1 + e^{-2i\omega t} & 0 \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

$$\begin{aligned} \Omega \cos(\omega t) \hat{U}^\dagger \hat{S}_y \hat{U} &= \dots \\ &= \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & -i(e^{i\phi} + e^{-2i\omega t + \phi}) & 0 \\ i(e^{i\phi} + e^{2i\omega t + \phi}) & 0 & -i(e^{i\phi} + e^{2i\omega t + \phi}) \\ 0 & i(e^{i\phi} + e^{-2i\omega t + \phi}) & 0 \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

Zusammengenommen ergibt sich damit für den Hamiltonoperator im rotierenden Bezugssystem \mathcal{H}'_{MW}

A.3 Herleitung des Hamiltonoperators im rotierenden Bezugssystem

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}'_{MW} &= \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & 1 + e^{-2i\omega t} & 0 \\ 1 + e^{2i\omega t} & 0 & 1 + e^{2i\omega t} \\ 0 & 1 + e^{-2i\omega t} & 0 \end{bmatrix} \\
&+ \frac{\Omega}{2\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & -i(e^{i\phi} + e^{-2i\omega t + \phi}) & 0 \\ i(e^{i\phi} + e^{2i\omega t + \phi}) & 0 & -i(e^{i\phi} + e^{2i\omega t + \phi}) \\ 0 & i(e^{i\phi} + e^{-2i\omega t + \phi}) & 0 \end{bmatrix} \\
&= \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & \varepsilon_- & 0 \\ \varepsilon_-^* & 0 & \varepsilon_+ \\ 0 & \varepsilon_+^* & 0 \end{bmatrix} + \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & e^{-2i\omega t} \varepsilon_+ & 0 \\ e^{2i\omega t} \varepsilon_{*+} & 0 & e^{2i\omega t} \varepsilon_- \\ 0 & e^{-2i\omega t} \varepsilon_{*+} & 0 \end{bmatrix}, \quad (\text{A.12})
\end{aligned}$$

wobei gilt

$$\varepsilon_{\pm} = \frac{1}{2} e^{\mp i\phi_s} (1 - i e^{\pm i\phi}). \quad (\text{A.13})$$

Unter der Berücksichtigung der Nullfeldaufspaltung und des externen Magnetfelds lautet der in das rotierende System übersetzte, vollständige Hamiltonoperator

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}' &= \begin{bmatrix} \Delta_- & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta_+ \end{bmatrix} + \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & \varepsilon_- & 0 \\ \varepsilon_-^* & 0 & \varepsilon_+ \\ 0 & \varepsilon_+^* & 0 \end{bmatrix} \\
&+ \frac{\Omega}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 0 & e^{-2i\omega t} \varepsilon_+ & 0 \\ e^{2i\omega t} \varepsilon_{*+} & 0 & e^{2i\omega t} \varepsilon_- \\ 0 & e^{-2i\omega t} \varepsilon_{*+} & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.14})
\end{aligned}$$

mit $\Delta_{\pm} = D \pm \gamma B_{ext} - \omega$. Der Ausdruck ist identisch zu Gleichung 3.16, die in Kapitel 3.3 den Ausgangspunkt der Rotating Wave Approximation bildet.

Literaturverzeichnis

- [1] R. Wiesendanger. *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy: Methods and Applications*. Cambridge University Press (1994). ISBN 9780521428477. URL <https://books.google.de/books?id=EXae0pjS2vwC>.
- [2] S. Morita, F. Giessibl und R. Wiesendanger. *Noncontact Atomic Force Microscopy: Volume 2*. NanoScience and Technology. Springer (2009). ISBN 9783642014956. URL <https://books.google.de/books?id=kuNTEWKAVacC>.
- [3] D. Rugar, H. J. Mamin, P. Guethner, S. E. Lambert, J. E. Stern, I. McFadyen und T. Yogi. *Magnetic force microscopy: General principles and application to longitudinal recording media*. Journal of Applied Physics, **68**, 1169 (1990). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/68/3/10.1063/1.346713>.
- [4] G. D. Skidmore und E. D. Dahlberg. *Improved spatial resolution in magnetic force microscopy*. Applied Physics Letters, **71**, 3293 (1997). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/71/22/10.1063/1.120316>.
- [5] S.-H. Chao, W. M. Dougherty, J. L. Garbini und J. A. Sidles. *Nanometer-scale magnetic resonance imaging*. Review of Scientific Instruments, **75**, 1175 (2004). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/75/5/10.1063/1.1666983>.
- [6] C. L. Degen, M. Poggio, H. J. Mamin, C. T. Rettner und D. Rugar. *Nanoscale magnetic resonance imaging*. Proceedings of the National Academy of Science, **106**, 1313 (2009). URL <http://www.pnas.org/content/106/5/1313.abstract>.
- [7] A. M. Chang, H. D. Hallen, L. Harriott, H. F. Hess, H. L. Kao, J. Kwo, R. E. Miller, R. Wolfe, J. van der Ziel und T. Y. Chang. *Scanning Hall probe microscopy*. Applied Physics Letters, **61**, 1974 (1992). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/61/16/10.1063/1.108334>.
- [8] B. K. Chong, H. Zhou, G. Mills, L. Donaldson und J. M. R. Weaver. *Scanning Hall probe microscopy on an atomic force microscope tip*. Journal of Vacuum

- Science & Technology A, **19**, 1769 (2001). URL <http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvsta/19/4/10.1116/1.1379324>.
- [9] D. Vasyukov, Y. Anahory, L. Embon, D. Halbertal, J. Cuppens, L. Neeman, A. Finkler, Y. Segev, Y. Myasoedov, M. L. Rappaport, M. E. Huber und E. Zeldov. *A scanning superconducting quantum interference device with single electron spin sensitivity*. Nat Nano, **8**, 639 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2013.169>.
- [10] M. Faraday. *Experimental Researches in Electricity. Nineteenth Series*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, **136**, 1 (1846). URL <http://rstl.royalsocietypublishing.org/content/136/1.short>.
- [11] H. G. Dehmelt. *Modulation of a Light Beam by Precessing Absorbing Atoms*. Phys. Rev., **105**, 1924 (1957). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.105.1924>.
- [12] W. E. Bell und A. L. Bloom. *Optical Detection of Magnetic Resonance in Alkali Metal Vapor*. Phys. Rev., **107**, 1559 (1957). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.107.1559>.
- [13] W. E. Bell und A. L. Bloom. *Optically Driven Spin Precession*. Phys. Rev. Lett., **6**, 280 (1961). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.6.280>.
- [14] W. C. Griffith, S. Knappe und J. Kitching. *Femtotesla atomic magnetometry in a microfabricated vapor cell*. Opt. Express, **18**, 27167 (2010). URL <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-26-27167>.
- [15] I. K. Kominis, T. W. Kornack, J. C. Allred und M. V. Romalis. *A subfemtotesla multichannel atomic magnetometer*. Nature, **422**, 596 (2003). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature01484>.
- [16] B. Patton, E. Zhivun, D. C. Hovde und D. Budker. *All-Optical Vector Atomic Magnetometer*. Phys. Rev. Lett., **113**, 013001 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.013001>.
- [17] N. F. Ness, C. S. Scarce und J. B. Seek. *Initial results of the imp 1 magnetic field experiment*. Journal of Geophysical Research, **69**, 3531 (1964). URL <http://dx.doi.org/10.1029/JZ069i017p03531>.
- [18] R. Langel, G. Ousley, J. Berbert, J. Murphy und M. Settle. *The MAGSAT mission*. Geophysical Research Letters, **9**, 243 (1982). URL <http://dx.doi.org/10.1029/GL009i004p00243>.

- [19] E. Geophysics. *Geophysics Today: A Survey of the Field as the Journal Celebrates Its 75th Anniversary*. Geophysical references. Society of Exploration Geophysicists (2010). ISBN 9781560802266. URL <https://books.google.de/books?id=oU2K6ZSpmSMC>.
- [20] H. Xia, A. Ben-Amar Baranga, D. Hoffman und M. V. Romalis. *Magnetoencephalography with an atomic magnetometer*. Applied Physics Letters, **89**, 211104 (2006). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/89/21/10.1063/1.2392722>.
- [21] T. G. Vold, F. J. Raab, B. Heckel und E. N. Fortson. *Search for a Permanent Electric Dipole Moment on the ^{129}Xe Atom*. Phys. Rev. Lett., **52**, 2229 (1984). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.52.2229>.
- [22] G. Vasilakis, J. M. Brown, T. W. Kornack und M. V. Romalis. *Limits on New Long Range Nuclear Spin-Dependent Forces Set with a $\text{K-}^3\text{He}$ Comagnetometer*. Phys. Rev. Lett., **103**, 261801 (2009). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.103.261801>.
- [23] M. Smiciklas, J. M. Brown, L. W. Cheuk, S. J. Smullin und M. V. Romalis. *New Test of Local Lorentz Invariance Using a $^{21}\text{Ne-Rb-K}$ Comagnetometer*. Phys. Rev. Lett., **107**, 171604 (2011). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.171604>.
- [24] V. M. Acosta, D. Budker, P. R. Hemmer, J. R. Maze und R. L. Walsworth. *Optical Magnetometry*. Optical Magnetometry. Cambridge University Press (2013). ISBN 9781107010352. URL <http://books.google.de/books?id=2yr1dBj0rSsC>.
- [25] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup und C. v. Borzyskowski. *Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers*. Science, **276**, 2012 (1997). URL <http://www.sciencemag.org/content/276/5321/2012.abstract>.
- [26] C. L. Degen. *Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor*. Applied Physics Letters, **92**, 243111 (2008). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/92/24/10.1063/1.2943282>.
- [27] G. Balasubramanian, I. Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P. R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions*. Nature, **455**, 648 (2008). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature07278>.

- [28] J. R. Maze, P. L. Stanwix, J. S. Hodges, S. Hong, J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M. V. G. Dutt, E. Togan, A. S. Zibrov, A. Yacoby, R. L. Walsworth und M. D. Lukin. *Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond*. *Nature*, **455**, 644 (2008). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature07279>.
- [29] H. Kraus, V. A. Soltamov, F. Fuchs, D. Simin, A. Sperlich, P. G. Baranov, G. V. Astakhov und V. Dyakonov. *Magnetic field and temperature sensing with atomic-scale spin defects in silicon carbide*. *Sci. Rep.*, **4**, (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1038/srep05303>.
- [30] S. Steinert, F. Dolde, P. Neumann, A. Aird, B. Naydenov, G. Balasubramanian, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *High sensitivity magnetic imaging using an array of spins in diamond*. *Review of Scientific Instruments*, **81**, 043705 (2010). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/81/4/10.1063/1.3385689>.
- [31] S. Steinert, F. Ziem, L. T. Hall, A. Zappe, M. Schweikert, N. Götz, A. Aird, G. Balasubramanian, L. Hollenberg und J. Wrachtrup. *Magnetic spin imaging under ambient conditions with sub-cellular resolution*. *Nat Commun*, **4**, 1607 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms2588>.
- [32] J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth und M. D. Lukin. *High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution*. *Nat Phys*, **4**, 810 (2008). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys1075>.
- [33] M. Loretz, T. Rosskopf, J. M. Boss, S. Pezzagna, J. Meijer und C. L. Degen. *Single-proton spin detection by diamond magnetometry*. *Science* (2014). URL <http://www.sciencemag.org/content/early/2015/01/08/science.1259464.abstract>.
- [34] J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-V. Kim, L. H. Diez, J.-P. Adam, K. Garcia, J.-F. Roch, S. Rohart, A. Thiaville, D. Ravelosona und V. Jacques. *Nanoscale imaging and control of domain-wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope*. *Science*, **344**, 1366 (2014). URL <http://www.sciencemag.org/content/344/6190/1366.abstract>.
- [35] D. Le Sage, K. Arai, D. R. Glenn, S. J. DeVience, L. M. Pham, L. Rahn-Lee, M. D. Lukin, A. Yacoby, A. Komeili und R. L. Walsworth. *Optical magnetic imaging of living cells*. *Nature*, **496**, 486 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature12072>.

- [36] L. T. Hall, G. C. G. Beart, E. A. Thomas, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, J. H. Cole, J. H. Manton, R. E. Scholten, F. Jelezko, J. Wrachtrup, S. Petrou und L. C. L. Hollenberg. *High spatial and temporal resolution wide-field imaging of neuron activity using quantum NV-diamond*. *Sci. Rep.*, **2**, (2012). URL <http://dx.doi.org/10.1038/srep00401>.
- [37] T. Dietl und H. Ohno. *Dilute ferromagnetic semiconductors: Physics and spintronic structures*. *Rev. Mod. Phys.*, **86**, 187 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.86.187>.
- [38] B. A. Bernevig, T. L. Hughes und S.-C. Zhang. *Quantum Spin Hall Effect and Topological Phase Transition in HgTe Quantum Wells*. *Science*, **314**, 1757 (2006). URL <http://www.sciencemag.org/content/314/5806/1757.abstract>.
- [39] M. König, S. Wiedmann, C. Brüne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.-L. Qi und S.-C. Zhang. *Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells*. *Science*, **318**, 766 (2007). URL <http://www.sciencemag.org/content/318/5851/766.abstract>.
- [40] X.-L. Qi, R. Li, J. Zang und S.-C. Zhang. *Inducing a Magnetic Monopole with Topological Surface States*. *Science*, **323**, 1184 (2009). URL <http://www.sciencemag.org/content/323/5918/1184.abstract>.
- [41] E. J. König, P. M. Ostrovsky, I. V. Protopopov, I. V. Gornyi, I. S. Burmistrov und A. D. Mirlin. *Half-integer quantum Hall effect of disordered Dirac fermions at a topological insulator surface*. *Phys. Rev. B*, **90**, 165435 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.90.165435>.
- [42] S. Sekatskii und V. Letokhov. *Nanometer-resolution scanning optical microscope with resonance excitation of the fluorescence of the samples from a single-atom excited center*. *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, **63**, 319 (1996). URL <http://dx.doi.org/10.1134/1.567024>.
- [43] B. M. Chernobrod und G. P. Berman. *Spin microscope based on optically detected magnetic resonance*. *Journal of Applied Physics*, **97**, 014903 (2005). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/97/1/10.1063/1.1829373>.
- [44] P. Maletinsky, S. Hong, M. S. Grinolds, B. Hausmann, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, M. Loncar und A. Yacoby. *A robust scanning diamond sensor for nanoscale imaging with single nitrogen-vacancy centres*. *Nat Nano*, **7**, 320 (2012). URL http://www.nature.com/nnano/journal/v7/n5/full/nnano.2012.50.html?WT.ec_id=NNANO-201205.

LITERATURVERZEICHNIS

- [45] J. H. E. Griffiths, J. Owen und I. M. Ward. *Paramagnetic Resonance in Neutron-Irradiated Diamond and Smoky Quartz*. Nature, **173**, 439 (1954). URL <http://dx.doi.org/10.1038/173439a0>.
- [46] W. V. Smith, P. P. Sorokin, I. L. Gelles und G. J. Lasher. *Electron-Spin Resonance of Nitrogen Donors in Diamond*. Phys. Rev., **115**, 1546 (1959). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.115.1546>.
- [47] J. H. N. Loubser und J. A. van Wyk. *Electron spin resonance in the study of diamond*. Reports on Progress in Physics, **41**, 1201 (1978). URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/41/i=8/a=002>.
- [48] I. Aharonovich, S. Castelletto, B. C. Johnson, J. C. McCallum, D. A. Simpson, A. D. Greentree und S. Praver. *Chromium single-photon emitters in diamond fabricated by ion implantation*. Phys. Rev. B, **81**, 121201 (2010). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.81.121201>.
- [49] T. Müller, I. Aharonovich, L. Lombez, Y. Alaverdyan, A. N. Vamivakas, S. Castelletto, F. Jelezko, J. Wrachtrup, S. Praver und M. Atatüre. *Wide-range electrical tunability of single-photon emission from chromium-based colour centres in diamond*. New Journal of Physics, **13**, 075001 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=7/a=075001>.
- [50] G. D. Marshall, T. Gaebel, J. C. F. Matthews, J. Enderlein, J. L. O'Brien und J. R. Rabreau. *Coherence properties of a single dipole emitter in diamond*. New Journal of Physics, **13**, 055016 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=5/a=055016>.
- [51] P. Siyushev, V. Jacques, I. Aharonovich, F. Kaiser, T. Müller, L. Lombez, M. Atatüre, S. Castelletto, S. Praver, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Low-temperature optical characterization of a near-infrared single-photon emitter in nanodiamonds*. New Journal of Physics, **11**, 113029 (2009). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/11/i=11/a=113029>.
- [52] T. Müller, C. Hepp, B. Pingault, E. Neu, S. Gsell, M. Schreck, H. Sternschulte, D. Steinmüller-Nethl, C. Becher und M. Atatüre, M.üre. *Optical signatures of silicon-vacancy spins in diamond*. Nat Commun, **5**, (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms4328>.
- [53] C. Hepp, T. Müller, V. Waselowski, J. N. Becker, B. Pingault, H. Sternschulte, D. Steinmüller-Nethl, A. Gali, J. R. Maze, M. Atatüre und C. Becher. *Electronic Structure of the Silicon Vacancy Color Center in Diamond*. Phys. Rev. Lett., **112**, 036405 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.112.036405>.

- [54] A. Sipahigil, D. Jahnke, K. J. Rogers, L. T. Teraji, J. Isoya, S. Zibrov, A. F. Jelezko und D. Lukin, M. *Indistinguishable Photons from Separated Silicon-Vacancy Centers in Diamond*. Phys. Rev. Lett., **113**, 113602 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.113602>.
- [55] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat und P. Grangier. *Single Photon Quantum Cryptography*. Phys. Rev. Lett., **89**, 187901 (2002). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.89.187901>.
- [56] M. Leifgen, T. Schröder, F. Gädeke, R. Riemann, V. Métillon, E. Neu, C. Hepp, C. Arend, C. Becher, K. Lauritsen und O. Benson. *Evaluation of nitrogen- and silicon-vacancy defect centres as single photon sources in quantum key distribution*. New Journal of Physics, **16**, 023021 (2014). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/16/i=2/a=023021>.
- [57] E. van Oort, N. B. Manson und M. Glasbeek. *Optically detected spin coherence of the diamond N-V centre in its triplet ground state*. Journal of Physics C: Solid State Physics, **21**, 4385 (1988). URL <http://stacks.iop.org/0022-3719/21/i=23/a=020>.
- [58] P. Hemmer und J. Wrachtrup. *Where Is My Quantum Computer?* Science, **324**, 473 (2009). URL <http://www.sciencemag.org/content/324/5926/473.short>.
- [59] D. P. DiVincenzo. *The Physical Implementation of Quantum Computation*. Fortschritte der Physik, **48**, 771 (2000). URL [http://dx.doi.org/10.1002/1521-3978\(200009\)48:9/11<771::AID-PROP771>3.0.CO;2-E](http://dx.doi.org/10.1002/1521-3978(200009)48:9/11<771::AID-PROP771>3.0.CO;2-E).
- [60] M. W. Doherty, V. V. Struzhkin, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, Y. Meng, A. Stacey, T. J. Karle, R. J. Hemley, N. B. Manson, L. C. L. Hollenberg und S. Prawer. *Electronic Properties and Metrology Applications of the Diamond NV-Center under Pressure*. Phys. Rev. Lett., **112**, 047601 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.112.047601>.
- [61] P. Neumann, I. Jakobi, F. Dolde, C. Burk, R. Reuter, G. Waldherr, J. Honert, T. Wolf, A. Brunner, J. H. Shim, D. Suter, H. Sumiya, J. Isoya und J. Wrachtrup. *High-Precision Nanoscale Temperature Sensing Using Single Defects in Diamond*. Nano Letters, **13**, 2738 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nl401216y>. PMID: 23721106.
- [62] F. Dolde, H. Fedder, M. W. Doherty, T. Nobauer, F. Rempp, G. Balasubramanian, T. Wolf, F. Reinhard, L. C. L. Hollenberg, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Electric-field sensing using single diamond spins*. Nat Phys, **7**, 459 (2011). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys1969>.

LITERATURVERZEICHNIS

- [63] S. Bertaina, S. Gambarelli, A. Tkachuk, I. N. Kurkin, B. Malkin, A. Stepanov und B. Barbara. *Rare-earth solid-state qubits*. Nat Nano, **2**, 39 (2007). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2006.174>.
- [64] J. Clarke und F. K. Wilhelm. *Superconducting quantum bits*. Nature, **453**, 1031 (2008). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature07128>.
- [65] R. Barends, J. Kelly, A. Megrant, A. Veitia, D. Sank, E. Jeffrey, T. C. White, J. Mutus, A. G. Fowler, B. Campbell, Y. Chen, Z. Chen, B. Chiaro, A. Dunsforth, C. Neill, P. O'Malley, P. Roushan, A. Vainsencher, J. Wenner, A. N. Korotkov, A. N. Cleland und J. M. Martinis. *Superconducting quantum circuits at the surface code threshold for fault tolerance*. Nature, **508**, 500 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature13171>.
- [66] A. Morello, J. J. Pla, F. A. Zwanenburg, K. W. Chan, K. Y. Tan, H. Huebl, M. Mottonen, C. D. Nugroho, C. Yang, J. A. van Donkelaar, A. D. C. Alves, D. N. Jamieson, C. C. Escott, L. C. L. Hollenberg, R. G. Clark und A. S. Dzurak. *Single-shot readout of an electron spin in silicon*. Nature, **467**, 687 (2010). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature09392>.
- [67] A. L. Falk, B. B. Buckley, G. Calusine, W. F. Koehl, V. V. Dobrovitski, A. Politi, C. A. Zorman, P. X.-L. Feng und D. D. Awschalom. *Polytype control of spin qubits in silicon carbide*. Nat Commun, **4**, 1819 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms2854>.
- [68] H. Kraus, V. A. Soltamov, D. Riedel, S. Vath, F. Fuchs, A. Sperlich, P. G. Baranov, V. Dyakonov und G. V. Astakhov. *Room-temperature quantum microwave emitters based on spin defects in silicon carbide*. Nat Phys, **10**, 157 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys2826>.
- [69] J. Walker. *Optical absorption and luminescence in diamond*. Reports on Progress in Physics, **42**, 1605 (1979). URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/42/i=10/a=001>.
- [70] M. Markham, J. Dodson, G. Scarsbrook, D. Twitchen, G. Balasubramanian, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *{CVD} diamond for spintronics*. Diamond and Related Materials, **20**, 134 (2011). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0925963510003274>.
- [71] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda und H. Weinfurter. *Stable Solid-State Source of Single Photons*. Phys. Rev. Lett., **85**, 290 (2000). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.85.290>.
- [72] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber und J. Wrachtrup. *Observation of Coherent Oscillations in a Single Electron Spin*. Phys. Rev. Lett., **92**,

- 076401 (2004). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.92.076401>.
- [73] J. Meijer, B. Burchard, M. Domhan, C. Wittmann, T. Gaebel, I. Popa, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Generation of single color centers by focused nitrogen implantation*. Applied Physics Letters, **87**, 261909 (2005). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/87/26/10.1063/1.2103389>.
- [74] P. Deák, B. Aradi, M. Kaviani, T. Frauenheim und A. Gali. *Formation of NV centers in diamond: A theoretical study based on calculated transitions and migration of nitrogen and vacancy related defects*. Phys. Rev. B, **89**, 075203 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.89.075203>.
- [75] M. Hauf, B. Grotz, B. Naydenov, M. Dankerl, S. Pezzagna, J. Meijer, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. Stutzmann, F. Reinhard und J. Garrido. *Chemical control of the charge state of nitrogen-vacancy centers in diamond*. Phys. Rev. B, **83**, 081304 (2011). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.83.081304>.
- [76] L. Rondin, G. Dantelle, A. Slablab, F. Grosshans, F. Treussart, P. Bergonzo, S. Perruchas, T. Gacoin, M. Chaigneau, H.-C. Chang, V. Jacques und J.-F. Roch. *Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds*. Phys. Rev. B, **82**, 115449 (2010). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.82.115449>.
- [77] P. Siyushev, H. Pinto, M. Vörös, A. Gali, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Optically Controlled Switching of the Charge State of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond at Cryogenic Temperatures*. Phys. Rev. Lett., **110**, 167402 (2013). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.110.167402>.
- [78] M. V. Hauf, P. Simon, N. Aslam, M. Pfender, P. Neumann, S. Pezzagna, J. Meijer, J. Wrachtrup, M. Stutzmann, F. Reinhard und J. A. Garrido. *Addressing Single Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond with Transparent in-Plane Gate Structures*. Nano Letters, **14**, 2359 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nl4047619>. PMID: 24716609.
- [79] S. Dresselhaus, G. Dresselhaus und A. Jorio. *Group Theory: Application to the Physics of Condensed Matter*. SpringerLink: Springer e-Books. Springer (2008). ISBN 9783540328971. URL <https://books.google.de/books?id=sKaH8vrfmnQC>.

LITERATURVERZEICHNIS

- [80] A. Lenef und S. Rand. *Electronic structure of the N-V center in diamond: Theory*. Phys. Rev. B, **53**, 13441 (1996). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.53.13441>.
- [81] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney und L. C. L. Hollenberg. *The negatively charged nitrogen-vacancy centre in diamond: the electronic solution*. New Journal of Physics, **13**, 025019 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=2/a=025019>.
- [82] J. R. Maze, A. Gali, E. Togan, Y. Chu, A. Trifonov, E. Kaxiras und M. D. Lukin. *Properties of nitrogen-vacancy centers in diamond: the group theoretic approach*. New Journal of Physics, **13**, 025025 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=2/a=025025>.
- [83] A. Gali, E. Janzén, P. Deák, G. Kresse und E. Kaxiras. *Theory of Spin-Conserving Excitation of the N-V⁻ Center in Diamond*. Phys. Rev. Lett., **103**, 186404 (2009). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.103.186404>.
- [84] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup und L. C. Hollenberg. *The nitrogen-vacancy colour centre in diamond*. Physics Reports, **528**, 1 (2013). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157313000562>. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond.
- [85] L. Goldman, M. A. Sipahigil, W. Doherty, M. Y. Yao, N. D. Bennett, S. M. Markham, J. Twitchen, D. B. Manson, N. A. Kubanek und D. Lukin. *Phonon-Induced Population Dynamics and Intersystem Crossing in Nitrogen-Vacancy Centers*. Phys. Rev. Lett., **114**, 145502 (2015). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.114.145502>.
- [86] M. L. Goldman, M. W. Doherty, A. Sipahigil, N. Y. Yao, S. D. Bennett, N. B. Manson, A. Kubanek und M. D. Lukin. *State-selective intersystem crossing in nitrogen-vacancy centers*. Phys. Rev. B, **91**, 165201 (2015). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.165201>.
- [87] V. M. Acosta, E. Bauch, A. Jarmola, L. J. Zipp, M. P. Ledbetter und D. Budker. *Broadband magnetometry by infrared-absorption detection of nitrogen-vacancy ensembles in diamond*. Applied Physics Letters, **97**, 174104 (2010). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/97/17/10.1063/1.3507884>.
- [88] L. J. Rogers, S. Armstrong, M. J. Sellars und N. B. Manson. *Infrared emission of the NV centre in diamond: Zeeman and uniaxial stress studies*. New Journal of Physics, **10**, 103024 (2008). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/10/i=10/a=103024>.

- [89] N. Manson, J. Harrison und M. Sellars. *Nitrogen-vacancy center in diamond: Model of the electronic structure and associated dynamics*. Phys. Rev. B, **74**, 104303 (2006). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.74.104303>.
- [90] S. Schönfeld. *Optical readout of single spins for quantum computing and magnetic sensing*. Doktorarbeit, Freie Universität Berlin (2011). URL http://www.diss.fu-berlin.de/diss/servlets/MCRFileNodeServlet/FUDISS_derivate_000000012199/Dissertation_Simon_Schoenfeld_PublicVersion-2.pdf.
- [91] C. Bradac, T. Gaebel, N. Naidoo, M. J. Sellars, J. Twamley, L. J. Brown, A. S. Barnard, T. Plakhotnik, V. A. Zvyagin und J. R. Rabeau. *Observation and control of blinking nitrogen-vacancy centres in discrete nanodiamonds*. Nat Nano, **5**, 345 (2010). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2010.56>.
- [92] L. Rondin, J. P. Tetienne, S. Rohart, A. Thiaville, T. Hingant, P. Spinicelli, J. F. Roch und V. Jacques. *Stray-field imaging of magnetic vortices with a single diamond spin*. Nat Commun, **4**, (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms3279>.
- [93] I. V. Fedotov, L. V. Doronina-Amitonova, A. A. Voronin, A. O. Levchenko, S. A. Zibrov, D. A. Sidorov-Biryukov, A. B. Fedotov, V. L. Velichansky und A. M. Zheltikov. *Electron spin manipulation and readout through an optical fiber*. Sci. Rep., **4**, (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1038/srep05362>.
- [94] B. J. Maertz, A. P. Wijnheijmer, G. D. Fuchs, M. E. Nowakowski und D. D. Awschalom. *Vector magnetic field microscopy using nitrogen vacancy centers in diamond*. Applied Physics Letters, **96**, 092504 (2010). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/96/9/10.1063/1.3337096>.
- [95] V. Acosta, E. Bauch, M. Ledbetter, C. Santori, K.-M. Fu, P. Barclay, R. Beausoleil, H. Linet, J. Roch, F. Treussart, S. Chemerisov, W. Gawlik und D. Budker. *Diamonds with a high density of nitrogen-vacancy centers for magnetometry applications*. Phys. Rev. B, **80**, 115202 (2009). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.80.115202>.
- [96] B. Smeltzer, L. Childress und A. Gali. *^{13}C hyperfine interactions in the nitrogen-vacancy centre in diamond*. New Journal of Physics, **13**, 025021 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=2/a=025021>.
- [97] M. V. G. Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer und M. D. Lukin. *Quantum Register Based on Individual Electronic and Nuclear Spin Qubits in Diamond*. Science, **316**, 1312

LITERATURVERZEICHNIS

- (2007). URL <http://www.sciencemag.org/content/316/5829/1312.abstract>.
- [98] J. R. Rabeau, P. Reichart, G. Tamanyan, D. N. Jamieson, S. Praver, F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, M. Domhan und J. Wrachtrup. *Implantation of labelled single nitrogen vacancy centers in diamond using N15*. Applied Physics Letters, **88**, 023113 (2006). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/88/2/10.1063/1.2158700>.
- [99] S. Felton, A. Edmonds, M. Newton, P. Martineau, D. Fisher, D. Twitchen und J. Baker. *Hyperfine interaction in the ground state of the negatively charged nitrogen vacancy center in diamond*. Phys. Rev. B, **79**, 075203 (2009). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.79.075203>.
- [100] J.-P. Tetienne, L. Rondin, P. Spinicelli, M. Chipaux, T. Debuisschert, J.-F. Roch und V. Jacques. *Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: an application to qualitative all-optical magnetic imaging*. New Journal of Physics, **14**, 103033 (2012). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/14/i=10/a=103033>.
- [101] A. Hegyi und E. Yablonovitch. *Nanodiamond molecular imaging with enhanced contrast and expanded field of view*. Journal of Biomedical Optics, **19**, 011015 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1117/1.JBO.19.1.011015>.
- [102] V. R. Horowitz, B. J. Alemán, D. J. Christle, A. N. Cleland und D. D. Awschalom. *Electron spin resonance of nitrogen-vacancy centers in optically trapped nanodiamonds*. Proceedings of the National Academy of Sciences, **109**, 13493 (2012). URL <http://www.pnas.org/content/109/34/13493.abstract>.
- [103] V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, A. Waxman, L.-S. Bouchard und D. Budker. *Temperature Dependence of the Nitrogen-Vacancy Magnetic Resonance in Diamond*. Phys. Rev. Lett., **104**, 070801 (2010). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.070801>.
- [104] X.-D. Chen, C.-H. Dong, F.-W. Sun, C.-L. Zou, J.-M. Cui, Z.-F. Han und G.-C. Guo. *Temperature dependent energy level shifts of nitrogen-vacancy centers in diamond*. Applied Physics Letters, **99**, 161903 (2011). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/99/16/10.1063/1.3652910>.
- [105] T. Sato, K. Ohashi, T. Sudoh, K. Haruna und H. Maeta. *Thermal expansion of a high purity synthetic diamond single crystal at low temperatures*. Phys. Rev. B, **65**, 092102 (2002). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.65.092102>.

- [106] M. W. Doherty, V. M. Acosta, A. Jarmola, M. S. J. Barson, N. B. Manson, D. Budker und L. C. L. Hollenberg. *Temperature shifts of the resonances of the NV center in diamond*. Phys. Rev. B, **90**, 041201 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.90.041201>.
- [107] G. Kucsko, P. C. Maurer, N. Y. Yao, M. Kubo, H. J. Noh, P. K. Lo, H. Park und M. D. Lukin. *Nanometre-scale thermometry in a living cell*. Nature, **500**, 54 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nature12373>.
- [108] D. Redman, S. Brown, R. Sands und S. Rand. *Spin dynamics and electronic states of N- V centers in diamond by EPR and four-wave-mixing spectroscopy*. Phys. Rev. Lett., **67**, 3420 (1991). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.67.3420>.
- [109] A. Jarmola, V. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov und D. Budker. *Temperature- and Magnetic-Field-Dependent Longitudinal Spin Relaxation in Nitrogen-Vacancy Ensembles in Diamond*. Phys. Rev. Lett., **108**, 197601 (2012). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.197601>.
- [110] L. Childress. *Coherent manipulation of single quantum systems in the solid state*. Doktorarbeit, The Department of Physics, Harvard University Cambridge (2007). URL sites.fas.harvard.edu/~phys191r/.../LilyThesis.pdf.
- [111] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu und F. Laloe. *Quantum Mechanics (2 vol. set)*. Wiley-Interscience (2006). ISBN 0471569526. URL <http://www.amazon.com/exec/obidos/redirect?tag=citeulike07-20&path=ASIN/0471569526>.
- [112] R. Hanson, O. Gywat und D. Awschalom. *Room-temperature manipulation and decoherence of a single spin in diamond*. Phys. Rev. B, **74**, 161203 (2006). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.74.161203>.
- [113] L. Vandersypen und I. Chuang. *NMR techniques for quantum control and computation*. Rev. Mod. Phys., **76**, 1037 (2005). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.76.1037>.
- [114] G. D. Fuchs, V. V. Dobrovitski, D. M. Toyli, F. J. Heremans und D. D. Awschalom. *Gigahertz Dynamics of a Strongly Driven Single Quantum Spin*. Science, **326**, 1520 (2009). URL <http://www.sciencemag.org/content/326/5959/1520.abstract>.
- [115] L. M. Pham. *Magnetic field sensing with Nitrogen-Vacancy Color centres in Diamond*. Doktorarbeit, The School of Engineering and Applied Science,

LITERATURVERZEICHNIS

- University of Harvard (2014). URL walsworth.physics.harvard.edu/publications/2013_Pham_HUPhDThesis.pdf.
- [116] N. F. Ramsey. *A Molecular Beam Resonance Method with Separated Oscillating Fields*. Phys. Rev., **78**, 695 (1950). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.78.695>.
- [117] E. L. Hahn. *Spin Echoes*. Phys. Rev., **80**, 580 (1950). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.80.580>.
- [118] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer und M. D. Lukin. *Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond*. Science, **314**, 281 (2006). URL <http://www.sciencemag.org/content/314/5797/281.abstract>.
- [119] S. Sangtawesin, T. O. Brundage, Z. J. Atkins und J. R. Petta. *Highly tunable formation of nitrogen-vacancy centers via ion implantation*. Applied Physics Letters, **105**, 063107 (2014). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/105/6/10.1063/1.4892971>.
- [120] H. Y. Carr und E. M. Purcell. *Effects of Diffusion on Free Precession in Nuclear Magnetic Resonance Experiments*. Phys. Rev., **94**, 630 (1954). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.94.630>.
- [121] S. Meiboom und D. Gill. *Modified Spin-Echo Method for Measuring Nuclear Relaxation Times*. Review of Scientific Instruments, **29**, 688 (1958). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/29/8/10.1063/1.1716296>.
- [122] L. M. Pham, N. Bar-Gill, D. Le Sage, C. Belthangady, A. Stacey, M. Markham, D. J. Twitchen, M. D. Lukin und R. L. Walsworth. *Enhanced metrology using preferential orientation of nitrogen-vacancy centers in diamond*. Phys. Rev. B, **86**, 121202 (2012). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.121202>.
- [123] S. Gasiorowicz. *Quantenphysik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag (2012). ISBN 9783486708448. URL <http://books.google.de/books?id=Xs4oWxN50noC>.
- [124] G. Davies und M. F. Hamer. *Optical Studies of the 1.945 eV Vibronic Band in Diamond*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, **348**, pp. 285 (1976). URL <http://www.jstor.org/stable/79142>.

- [125] R. J. Epstein, F. M. Mendoza, Y. K. Kato und D. D. Awschalom. *Anisotropic interactions of a single spin and dark-spin spectroscopy in diamond*. Nat Phys, **1**, 94 (2005). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys141>.
- [126] T. P. M. Alegre, C. Santori, G. Medeiros-Ribeiro und R. G. Beusoleil. *Polarization-selective excitation of nitrogen vacancy centers in diamond*. Phys. Rev. B, **76**, 165205 (2007). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.76.165205>.
- [127] A. M. Edmonds, U. F. S. D’Haenens-Johansson, R. J. Cruddace, M. E. Newton, K.-M. C. Fu, C. Santori, R. G. Beusoleil, D. J. Twitchen und M. L. Markham. *Production of oriented nitrogen-vacancy color centers in synthetic diamond*. Phys. Rev. B, **86**, 035201 (2012). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.035201>.
- [128] C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland und G. Lauhoff. *Magnetism in ultrathin film structures*. Reports on Progress in Physics, **71**, 056501 (2008). URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/71/i=5/a=056501>.
- [129] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich und J. Chazelas. *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*. Phys. Rev. Lett., **61**, 2472 (1988). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.61.2472>.
- [130] W. Gallagher und S. Parkin. *Development of the magnetic tunnel junction MRAM at IBM: From first junctions to a 16-Mb MRAM demonstrator chip*. IBM Journal of Research and Development, **50**, 5 (2006).
- [131] R. Simons. *Coplanar Waveguide Circuits, Components, and Systems*. Wiley Series in Microwave and Optical Engineering. Wiley (2004). ISBN 9780471463931. URL <https://books.google.de/books?id=XgNMZ5YVJdgC>.
- [132] P. London, P. Balasubramanian, B. Naydenov, L. P. McGuinness und F. Jelezko. *Strong driving of a single spin using arbitrarily polarized fields*. Phys. Rev. A, **90**, 012302 (2014). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.90.012302>.
- [133] W. Demtröder. *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*. Springer London, Limited (2007). ISBN 9783540337935. URL <http://books.google.de/books?id=1a0X-9TuSiAC>.
- [134] F. Meyer und B. P. Zakharchenya, Editoren. *Optical Orientation*. North-Holland, Amsterdam (1984).

- [135] M. Lesik, J.-P. Tetienne, A. Tallaire, J. Achard, V. Mille, A. Gicquel, J.-F. Roch und V. Jacques. *Perfect preferential orientation of nitrogen-vacancy defects in a synthetic diamond sample*. Applied Physics Letters, **104**, 113107 (2014). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/104/11/10.1063/1.4869103>.
- [136] T. Fukui, Y. Doi, T. Miyazaki, Y. Miyamoto, H. Kato, T. Matsumoto, T. Makino, S. Yamasaki, R. Morimoto, N. Tokuda, M. Hatano, Y. Sakagawa, H. Morishita, T. Tashima, S. Miwa, Y. Suzuki und N. Mizuochi. *Perfect selective alignment of nitrogen-vacancy centers in diamond*. Applied Physics Express, **7**, 055201 (2014). URL <http://stacks.iop.org/1882-0786/7/i=5/a=055201>.
- [137] J. Michl, T. Teraji, S. Zaiser, I. Jakobi, G. Waldherr, F. Dolde, P. Neumann, M. W. Doherty, N. B. Manson, J. Isoya und J. Wrachtrup. *Perfect alignment and preferential orientation of nitrogen-vacancy centers during chemical vapor deposition diamond growth on (111) surfaces*. Applied Physics Letters, **104**, 102407 (2014). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/104/10/10.1063/1.4868128>.
- [138] T. Häberle, D. Schmid-Lorch, K. Karrai, F. Reinhard und J. Wrachtrup. *High-Dynamic-Range Imaging of Nanoscale Magnetic Fields Using Optimal Control of a Single Qubit*. Phys. Rev. Lett., **111**, 170801 (2013). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.170801>.
- [139] M. S. Grinolds, S. Hong, P. Maletinsky, L. Luan, M. D. Lukin, R. L. Walsworth und A. Yacoby. *Nanoscale magnetic imaging of a single electron spin under ambient conditions*. Nat Phys, **9**, 215 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphys2543>.
- [140] E. Schaefer-Nolte, F. Reinhard, M. Ternes, J. Wrachtrup und K. Kern. *A diamond-based scanning probe spin sensor operating at low temperature in ultra-high vacuum*. Review of Scientific Instruments, **85**, 013701 (2014). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/85/1/10.1063/1.4858835>.
- [141] K. Bayat, J. Choy, M. Farrokh Baroughi, S. Meesala und M. Loncar. *Efficient, Uniform, and Large Area Microwave Magnetic Coupling to NV Centers in Diamond Using Double Split-Ring Resonators*. Nano Letters, **14**, 1208 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nl404072s>. PMID: 24571706.
- [142] M. H. Hoffmann. *Hochfrequenztechnik: Ein Systemtheoretischer Zugang*. Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg (1997). ISBN 9783540616672. URL <https://books.google.de/books?id=FKsj-wncMUsC>.

- [143] C. A. Balanis. *Antenna theory, Analysis and Design*. Wiley-Interscience (2005). URL <http://www.google.de/url?sa=t&rcct=j&q=&esrc=s&source=web&cd=1&cad=rja&uact=8&sqi=2&ved=0CCEQFjAA&url=http%3A%2F%2Fsite.iugaza.edu.ps%2Fmouda%2Ffiles%2F2011%2F02%2FThe-text-book1.pdf&ei=qC9iVISODsKtPMaGgYgI&usg=AFQjCNFa4yLPwHLW97vRZYGSa4KdQMfvLQ&bvm=bv.79189006,d.ZWU>.
- [144] T. Lee. *Planar Microwave Engineering: A Practical Guide to Theory, Measurement, and Circuits*. Number Bd. 1 in *Planar Microwave Engineering: A Practical Guide to Theory, Measurement, and Circuits*. Cambridge University Press (2004). ISBN 9780521835268. URL <https://books.google.de/books?id=uoj3IWFxbVYC>.
- [145] URL <http://www.comsol.de/models/rf-module>.
- [146] F. Bayer. *Projektarbeit: Optimierung der Simulationsergebnisse einer 2.8 GHz-Antenne*.
- [147] M. Thumm, W. Wiesbeck und S. Kern. *Hochfrequenzmesstechnik: Verfahren und Messsysteme*. Springer (1998). ISBN 9783519163602. URL <http://books.google.de/books?id=o6CY8hrEOVOC>.
- [148] D. Fasold. *Measurement Performance of Basic Compact Range Concepts*. In *AMTA Europe Symposium 2006* (2006). URL <http://www.compactrange.de/index.php?id=38>.
- [149] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat und P. Grangier. *Nonclassical radiation from diamond nanocrystals*. *Phys. Rev. A*, **64**, 061802 (2001). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.64.061802>.
- [150] P. Siyushev, F. Kaiser, V. Jacques, I. Gerhardt, S. Bischof, H. Fedder, J. Dodson, M. Markham, D. Twitchen, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Monolithic diamond optics for single photon detection*. *Applied Physics Letters*, **97**, 241902 (2010). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/97/24/10.1063/1.3519849>.
- [151] L. Marseglia, J. P. Hadden, A. C. Stanley-Clarke, J. P. Harrison, B. Patton, Y.-L. D. Ho, B. Naydenov, F. Jelezko, J. Meijer, P. R. Dolan, J. M. Smith, J. G. Rarity und J. L. O'Brien. *Nanofabricated solid immersion lenses registered to single emitters in diamond*. *Applied Physics Letters*, **98**, 133107 (2011). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/98/13/10.1063/1.3573870>.
- [152] J. P. Hadden, J. P. Harrison, A. C. Stanley-Clarke, L. Marseglia, Y.-L. D. Ho, B. R. Patton, J. L. O'Brien und J. G. Rarity. *Strongly enhanced*

- photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses.* Applied Physics Letters, **97**, 241901 (2010). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/97/24/10.1063/1.3519847>.
- [153] D. Wildanger, J. R. Maze und S. W. Hell. *Diffraction Unlimited All-Optical Recording of Electron Spin Resonances.* Phys. Rev. Lett., **107**, 017601 (2011). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.107.017601>.
- [154] E. Rittweger, K. Y. Han, S. E. Irvine, C. Eggeling und S. W. Hell. *STED microscopy reveals crystal colour centres with nanometric resolution.* Nat Photon, **3**, 144 (2009). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2009.2>.
- [155] X. Chen, C. Zou, Z. Gong, C. Dong, G. Guo und F. Sun. *Subdiffraction optical manipulation of the charge state of nitrogen vacancy center in diamond.* Light Sci Appl, **4**, e230 (2015). URL <http://dx.doi.org/10.1038/lsa.2015.3>.
- [156] T. van der Sar, E. C. Heeres, G. M. Dmochowski, G. de Lange, L. Robledo, T. H. Oosterkamp und R. Hanson. *Nanopositioning of a diamond nanocrystal containing a single nitrogen-vacancy defect center.* Applied Physics Letters, **94**, 173104 (2009). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/94/17/10.1063/1.3120558>.
- [157] L. Rondin, J.-P. Tetienne, P. Spinicelli, C. Dal Savio, K. Karrai, G. Dantelle, A. Thiaville, S. Rohart, J.-F. Roch und V. Jacques. *Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer.* Applied Physics Letters, **100**, 153118 (2012). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/100/15/10.1063/1.3703128>.
- [158] A. Drezet, Y. Sonnefraud, A. Cuche, O. Mollet, M. Berthel und S. Huant. *Near-field microscopy with a scanning nitrogen-vacancy color center in a diamond nanocrystal: A brief review.* Micron, **70**, 55 (2015). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0968432814002194>.
- [159] E. Neu, P. Appel, M. Ganzhorn, J. Miguel-Sanchez, M. Lesik, V. Mille, V. Jacques, A. Tallaire, J. Achard und P. Maletinsky. *Photonic nano-structures on (111)-oriented diamond.* Applied Physics Letters, **104**, 153108 (2014). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/104/15/10.1063/1.4871580>.
- [160] U. Hilleringmann. *Silizium-Halbleitertechnologie.* Teubner Studienbücher. Teubner (2004). ISBN 9783519301493. URL <http://books.google.de/books?id=6ZM2-CEIk2QC>.

- [161] H. Ryssel und I. Ruge. *Ionenimplantation*. Vieweg+Teubner Verlag (1978). ISBN 9783519032069. URL <https://books.google.de/books?id=TN3BAAAACAAJ>.
- [162] J. Lindhard, M. Scharff und H. Schiott. *Range concepts and heavy ion ranges (Notes on atomic collisions, II)*. Kgl. Danske Videnskab. Selskab. Mat. Fys. Medd., **14**, 1–49 (1963).
- [163] J. Ziegler, J. Biersack und M. Ziegler. *SRIM, the stopping and range of ions in matter*. SRIM Company (2008). ISBN 9780965420716. URL <https://books.google.de/books?id=JSN63qxPG5MC>.
- [164] B. K. Ofori-Okai, S. Pezzagna, K. Chang, M. Loretz, R. Schirhagl, Y. Tao, B. A. Moores, K. Groot-Berning, J. Meijer und C. L. Degen. *Spin properties of very shallow nitrogen vacancy defects in diamond*. Phys. Rev. B, **86**, 081406 (2012). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.081406>.
- [165] J. Tisler, G. Balasubramanian, B. Naydenov, R. Kolesov, B. Grotz, R. Reuter, J.-P. Boudou, P. A. Curmi, M. Sennour, A. Thorel, M. Börsch, K. Aulenbacher, R. Erdmann, P. R. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Fluorescence and Spin Properties of Defects in Single Digit Nanodiamonds*. ACS Nano, **3**, 1959 (2009). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nn9003617>. PMID: 21452865.
- [166] Y. Chen und L. Zhang. *Polishing of Diamond Materials: Mechanisms, Modeling and Implementation*. Engineering Materials and Processes. Springer (2013). ISBN 9781849964081. URL <https://books.google.de/books?id=LvhJAAAAQBAJ>.
- [167] Y. V. Butenko, V. L. Kuznetsov, A. L. Chuvilin, V. N. Kolomiichuk, S. V. Stanus, R. A. Khairulin und B. Segall. *Kinetics of the graphitization of dispersed diamonds at “low” temperatures*. Journal of Applied Physics, **88**, 4380 (2000). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/88/7/10.1063/1.1289791>.
- [168] T. Inui, T. Otowa, K. Tsutsumi und Y. Takegami. *Complete oxidation of active carbon at low temperatures by composite catalysts*. Carbon, **20**, 213 (1982). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0008622382900239>.
- [169] C. Nebel und J. Ristein. *Thin-Film Diamond I: (part of the Semiconductors and Semimetals Series)*. SEMSEM/Semiconductors and Semimetals Series. Elsevier Science (2003). ISBN 9780080541037. URL <https://books.google.de/books?id=GxRHEmRWUC>.

LITERATURVERZEICHNIS

- [170] R. A. Khmel'nitsky und A. A. Gippius. *Transformation of diamond to graphite under heat treatment at low pressure*. *Phase Transitions*, **87**, 175 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1080/01411594.2013.807429>.
- [171] M. Alam und Q. Sun. *The kinetics of chemical vapor deposited diamond-oxygen reaction*. *Journal of Materials Research*, **8**, 2870 (1993). URL http://journals.cambridge.org/article_S0884291400072095.
- [172] B. Grotz, J. Beck, P. Neumann, B. Naydenov, R. Reuter, F. Reinhard, F. Jelezko, J. Wrachtrup, D. Schweinfurth, B. Sarkar und P. Hemmer. *Sensing external spins with nitrogen-vacancy diamond*. *New Journal of Physics*, **13**, 055004 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=5/a=055004>.
- [173] J. Tisler, G. Balasubramanian, B. Naydenov, R. Kolesov, B. Grotz, R. Reuter, J.-P. Boudou, P. A. Curmi, M. Sennour, A. Thorel, M. Börsch, K. Aulenbacher, R. Erdmann, P. R. Hemmer, F. Jelezko und J. Wrachtrup. *Fluorescence and Spin Properties of Defects in Single Digit Nanodiamonds*. *ACS Nano*, **3**, 1959 (2009). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nn9003617>. PMID: 21452865.
- [174] G. S. Sandhu und W. K. Chu. *Reactive ion etching of diamond*. *Applied Physics Letters*, **55**, 437 (1989). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/55/5/10.1063/1.101890>.
- [175] E.-S. Baik, Y.-J. Baik und D. Jeon. *Diamond tip fabrication by air-plasma etching of diamond with an oxide mask*. *Diamond and Related Materials*, **8**, 2169 (1999). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0925963599001855>.
- [176] Y. Ando, Y. Nishibayashi und A. Sawabe. *'Nano-rods' of single crystalline diamond*. *Diamond and Related Materials*, **13**, 633 (2004). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0925963503004734>. 14th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide.
- [177] R. E. Lee. *Microfabrication by ion beam etching*. *Journal of Vacuum Science & Technology*, **16**, 164 (1979). URL <http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvst/16/2/10.1116/1.569897>.
- [178] Y. Ando, Y. Nishibayashi, K. Kobashi, T. Hirao und K. Oura. *Smooth and high-rate reactive ion etching of diamond*. *Diamond and Related Materials*, **11**, 824 (2002). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0925963501006173>. 12th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides & Silicon Carbide.

- [179] J. T. Choy, B. J. M. Hausmann, T. M. Babinec, I. Bulu, M. Khan, P. Maletinsky, A. Yacoby und M. Loncar. *Enhanced single-photon emission from a diamond-silver aperture*. Nat Photon, **5**, 738 (2011). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2011.249>.
- [180] E. M. Purcell. *Proceedings of the American Physical Society*. Phys. Rev., **69**, 674 (1946). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.69.674.2>.
- [181] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arawaka, Y. Yamamoto und J. Vučković. *Controlling the Spontaneous Emission Rate of Single Quantum Dots in a Two-Dimensional Photonic Crystal*. Phys. Rev. Lett., **95**, 013904 (2005). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.013904>.
- [182] A. Kress, F. Hofbauer, N. Reinelt, M. Kaniber, H. J. Krenner, R. Meyer, G. Böhm und J. J. Finley. *Manipulation of the spontaneous emission dynamics of quantum dots in two-dimensional photonic crystals*. Phys. Rev. B, **71**, 241304 (2005). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.71.241304>.
- [183] S. Noda, M. Fujita und T. Asano. *Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities*. Nat Photon, **1**, 449 (2007). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2007.141>.
- [184] H. Chew. *Radiation and lifetimes of atoms inside dielectric particles*. Phys. Rev. A, **38**, 3410 (1988). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.38.3410>.
- [185] K. Yee. *Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media*. Antennas and Propagation, IEEE Transactions on, **14**, 302 (1966). URL <http://ieeexplore.ieee.org/xpl/articleDetails.jsp?arnumber=1138693>.
- [186] I. Bulu, T. Babinec, B. Hausmann, J. T. Choy und M. Loncar. *Plasmonic resonators for enhanced diamond NV-center single photon sources*. Opt. Express, **19**, 5268 (2011). URL <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-19-6-5268>.
- [187] F. A. Inam, T. Gaebel, C. Bradac, L. Stewart, M. J. Withford, J. M. Dawes, J. R. Rabeau und M. J. Steel. *Modification of spontaneous emission from nanodiamond colour centres on a structured surface*. New Journal of Physics, **13**, 073012 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=7/a=073012>.

LITERATURVERZEICHNIS

- [188] B. R. Smith, D. W. Inglis, B. Sandnes, J. R. Rabeau, A. V. Zvyagin, D. Gruber, C. J. Noble, R. Vogel, E. Osawa und T. Plakhotnik. *Five-Nanometer Diamond with Luminescent Nitrogen-Vacancy Defect Centers*. *Small*, **5**, 1649 (2009). URL <http://dx.doi.org/10.1002/sml1.200801802>.
- [189] C.-C. Fu, H.-Y. Lee, K. Chen, T.-S. Lim, H.-Y. Wu, P.-K. Lin, P.-K. Wei, P.-H. Tsao, H.-C. Chang und W. Fann. *Characterization and application of single fluorescent nanodiamonds as cellular biomarkers*. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **104**, 727 (2007). URL <http://www.pnas.org/content/104/3/727.abstract>.
- [190] F. L. Zhao, Z. Gong, S. D. Liang, N. S. Xu, S. Z. Deng, J. Chen und H. Z. Wang. *Ultrafast optical emission of nanodiamond induced by laser excitation*. *Applied Physics Letters*, **85**, 914 (2004). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/85/6/10.1063/1.1777803>.
- [191] E. Petkov, T. Rendler, C. Petkov, F. Schnabel, J. P. Reithmaier, J. Wrachtrup, C. Popov und W. Kulisch. *Investigation of NV centers in nano- and ultrananocrystalline diamond pillars*. *physica status solidi (a)*, **210**, 2066 (2013). URL <http://dx.doi.org/10.1002/pssa.201329282>.
- [192] K. Beha, A. Batalov, N. B. Manson, R. Bratschitsch und A. Leitenstorfer. *Optimum Photoluminescence Excitation and Recharging Cycle of Single Nitrogen-Vacancy Centers in Ultrapure Diamond*. *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 097404 (2012). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.109.097404>.
- [193] M. V. Hauf, B. Grotz, B. Naydenov, M. Dankerl, S. Pezzagna, J. Meijer, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. Stutzmann, F. Reinhard und J. A. Garrido. *Chemical control of the charge state of nitrogen-vacancy centers in diamond*. *Phys. Rev. B*, **83**, 081304 (2011). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.83.081304>.
- [194] S. A. Momenzadeh, R. J. Stöhr, F. F. de Oliveira, A. Brunner, A. Denisenko, S. Yang, F. Reinhard und J. Wrachtrup. *Nanoengineered Diamond Waveguide as a Robust Bright Platform for Nanomagnetometry Using Shallow Nitrogen Vacancy Centers*. *Nano Letters*, **15**, 165 (2015). URL <http://dx.doi.org/10.1021/nl503326t>. PMID: 25438091.
- [195] B. J. M. Hausmann, T. M. Babinec, J. T. Choy, J. S. Hodges, S. Hong, I. Bulu, A. Yacoby, M. D. Lukin und M. Lončar. *Single-color centers implanted in diamond nanostructures*. *New Journal of Physics*, **13**, 045004 (2011). URL <http://stacks.iop.org/1367-2630/13/i=4/a=045004>.

- [196] T. M. Babinec, H. J. M., M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer und M. Loncar. *A diamond nanowire single-photon source*. Nat Nano, **5**, 195 (2010). URL <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2010.6>.
- [197] A. Gali, M. Fyta und E. Kaxiras. *Ab initio supercell calculations on nitrogen-vacancy center in diamond: Electronic structure and hyperfine tensors*. Phys. Rev. B, **77**, 155206 (2008). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.77.155206>.
- [198] J. B. Pethica. *Comment on "Interatomic forces in scanning tunneling microscopy: Giant corrugations of the graphite surface"*. Phys. Rev. Lett., **57**, 3235 (1986). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.57.3235>.
- [199] J. Wintterlin, J. Wiechers, H. Brune, T. Gritsch, H. Höfer und R. J. Behm. *Atomic-Resolution Imaging of Close-Packed Metal Surfaces by Scanning Tunneling Microscopy*. Phys. Rev. Lett., **62**, 59 (1989). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.62.59>.
- [200] G. Binnig, C. F. Quate und C. Gerber. *Atomic Force Microscope*. Phys. Rev. Lett., **56**, 930 (1986). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.56.930>.
- [201] J. Israelachvili. *Intermolecular and Surface Forces: Revised Third Edition*. Intermolecular and Surface Forces. Elsevier Science (2011). ISBN 9780123919335. URL <http://books.google.de/books?id=vgyBJbtN0coC>.
- [202] F. Ohnesorge und G. Binnig. *True Atomic Resolution by Atomic Force Microscopy Through Repulsive and Attractive Forces*. Science, **260**, 1451 (1993). URL <http://www.sciencemag.org/content/260/5113/1451.abstract>.
- [203] Y. Martin, C. C. Williams und H. K. Wickramasinghe. *Atomic force microscope-force mapping and profiling on a sub 100Å-scale*. Journal of Applied Physics, **61**, 4723 (1987). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/61/10/10.1063/1.338807>.
- [204] T. R. Albrecht, P. Grütter, D. Horne und D. Rugar. *Frequency modulation detection using high-Q cantilevers for enhanced force microscope sensitivity*. Journal of Applied Physics, **69**, 668 (1991). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/69/2/10.1063/1.347347>.
- [205] T. R. Albrecht, S. Akamine, T. E. Carver und C. F. Quate. *Microfabrication of cantilever styli for the atomic force microscope*. Journal of Vacuum

LITERATURVERZEICHNIS

- Science & Technology A, **8**, 3386 (1990). URL <http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvsta/8/4/10.1116/1.576520>.
- [206] F. J. Giessibl, F. Pielmeier, T. Eguchi, T. An und Y. Hasegawa. *Comparison of force sensors for atomic force microscopy based on quartz tuning forks and length-extensional resonators*. Phys. Rev. B, **84**, 125409 (2011). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.84.125409>.
- [207] K. Karrai und R. D. Grober. *Piezoelectric tip sample distance control for near field optical microscopes*. Applied Physics Letters, **66**, 1842 (1995). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/66/14/10.1063/1.113340>.
- [208] T. Murdfield, U. C. Fischer, H. Fuchs, R. Volk, A. Michels, F. Meinen und E. Beckman. *Acoustic and dynamic force microscopy with ultrasonic probes*. Journal of Vacuum Science & Technology B, **14**, 877 (1996). URL <http://scitation.aip.org/content/avs/journal/jvstb/14/2/10.1116/1.589166>.
- [209] P. Günther, U. Fischer und K. Dransfeld. *Scanning near-field acoustic microscopy*. Applied Physics B, **48**, 89 (1989). URL <http://dx.doi.org/10.1007/BF00694423>.
- [210] J.-M. Friedt und E. Carry. *Introduction to the quartz tuning fork*. American Journal of Physics, **75**, 415 (2007). URL <http://scitation.aip.org/content/aapt/journal/ajp/75/5/10.1119/1.2711826>.
- [211] R. C. Barrett und C. F. Quate. *Optical scan correction system applied to atomic force microscopy*. Review of Scientific Instruments, **62**, 1393 (1991). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/62/6/10.1063/1.1142506>.
- [212] L. E. C. van de Leemput, P. H. H. Rongen, B. H. Timmerman und H. van Kempen. *Calibration and characterization of piezoelectric elements as used in scanning tunneling microscopy*. Review of Scientific Instruments, **62**, 989 (1991). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/62/4/10.1063/1.1141989>.
- [213] B. Mokaberi und A. A. Requicha. *Compensation of Scanner Creep and Hysteresis for AFM Nanomanipulation*. Automation Science and Engineering, IEEE Transactions on, **5**, 197 (2008). URL http://ieeexplore.ieee.org/xpl/freeabs_all.jsp?arnumber=4358078&abstractAccess=no&userType=inst.

- [214] H. Jung und D.-G. Gweon. *Creep characteristics of piezoelectric actuators*. Review of Scientific Instruments, **71**, 1896 (2000). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/71/4/10.1063/1.1150559>.
- [215] B. Armingier, S. Adamsmaier, F. Kienberger, P. Hinterdorfer und B. G. Zagar. *Piezo-Aktoren und -Sensoren in der Rastersondenmikroskopie*. e & i Elektrotechnik und Informationstechnik, **125**, 86 (2008). URL <http://dx.doi.org/10.1007/s00502-008-0507-2>.
- [216] G. Bertotti, S. Sedigh und I. Mayergoyz. *The Science of Hysteresis: Volume 1 of 3-volume set*. Science of hysteresis. Elsevier Science (2005). ISBN 9780080962382. URL <http://books.google.de/books?id=qqbL73FmI2cC>.
- [217] T. Glatzel, H. Hölscher, T. Schimmel, M. Z. Baykara, U. D. Schwarz und R. Garcia. *Advanced atomic force microscopy techniques*. Beilstein Journal of Nanotechnology, **3**, 893 (2012). URL <http://www.beilstein-journals.org/bjnano/browse/singleSeries.htm?sn=13>.
- [218] N. V. Tarakina, S. Schreyeck, M. Luysberg, S. Grauer, C. Schumacher, G. Karczewski, K. Brunner, C. Gould, H. Buhmann, R. E. Dunin-Borkowski und L. W. Molenkamp. *Suppressing Twin Formation in Bi₂Se₃ Thin Films*. Advanced Materials Interfaces, **1**, n/a (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1002/admi.201400134>.
- [219] S. Schreyeck, N. V. Tarakina, G. Karczewski, C. Schumacher, T. Borzenko, C. Brüne, H. Buhmann, C. Gould, K. Brunner und L. W. Molenkamp. *Molecular beam epitaxy of high structural quality Bi₂Se₃ on lattice matched InP(111) substrates*. Applied Physics Letters, **102**, 041914 (2013). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/102/4/10.1063/1.4789775>.
- [220] K. Wiegardt. *Theoretische Strömungslehre*. Göttinger Klassiker der Strömungsmechanik. Univ.-Verlag Göttingen (2005). ISBN 9783938616338. URL <https://books.google.de/books?id=IdFxAuZWkqgC>.
- [221] F. D. Callaghan, X. Yu und C. J. Mellor. *Dynamic force microscopy in superfluid helium*. Applied Physics Letters, **81**, 916 (2002). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/81/5/10.1063/1.1496503>.
- [222] S. Hong. *Nanoscale Magnetic Imaging with a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond*. Doktorarbeit, The School of Engineering and Applied Science, University of Harvard (2012). URL <http://dash.harvard.edu/handle/1/10436262>.

LITERATURVERZEICHNIS

- [223] M. Grinolds. *Nanoscale Magnetic Resonance Imaging and Magnetic Sensing Using Atomic Defects in Diamond*. Doktorarbeit, The School of Engineering and Applied Science, University of Harvard (2014). URL <http://dash.harvard.edu/handle/1/12274105>.
- [224] C. Meyer, O. Sqalli, H. Lorenz und K. Karrai. *Slip-stick step-scanner for scanning probe microscopy*. *Review of Scientific Instruments*, **76**, 063706 (2005). URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/76/6/10.1063/1.1927105>.
- [225] U. Kubitschek, Editor. *Flourescence Microscopy*. Wiley-VCH, 1. edition (2013). URL <http://www.wiley-vch.de/publish/dt/books/ISBN978-3-527-32922-9>.

Liste wissenschaftlicher Beiträge

Folgende wissenschaftliche Beiträge sind im Rahmen dieses Promotionsvorhabens im Peer-Review-Verfahren veröffentlicht worden:

- *Optical power-driven electron spin relaxation regime crossover in Mn-doped bulk GaAs*, F. Münzhuber, T. Kiessling, W. Ossau, L. W. Molenkamp und G. V. Astakhov, Phys. Rev. B **92** 115208 (2015), <http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.92.115208>.
- *Exciton decay dynamics controlled by impurity occupation in strongly Mn-doped and partially compensated bulk GaAs*, F. Münzhuber, T. Henn, T. Kiessling, W. Ossau, L. W. Molenkamp, B. Giesecking, G. V. Astakhov, und V. Dyakonov, Phys. Rev. B **90**, 125203 (2014), <http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.90.125203>.
- *Induced magnetic anisotropy in lifted (Ga,Mn)As thin films*, F. Greullet, L. Ebel, F. Münzhuber, S. Mark, G. V. Astakhov, T. Kießling, C. Schumacher, C. Gould, K. Brunner, W. Ossau und L. W. Molenkamp, Appl. Phys. Lett. **98**, 231903 (2011), <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/98/23/10.1063/1.3597301>.

Folgende wissenschaftliche Vorträge wurden gehalten:

- *Exciton decay dynamics controlled by impurity occupation in Mn-doped and partially compensated bulk GaAs*, The International Conference of the Physics of Semiconductors 2014, Narrow-Gap Semiconductors III, Austin (TX), USA.
- *Spin Diffusion in p-type GaAs*, Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gemeinschaft 2012, Sektion Kondensierte Materie, HL 48.12: Focus Session: Spintronics, Berlin.

Folgende wissenschaftliche Posterpräsentationen wurden gegeben:

- *Radiative decay times in highly p-doped and partially compensated GaAs:Mn*, Gordon Research Conference on Spin Dynamics in Nanostructures 2013, The Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong, China.

Englischsprachige Zusammenfassung

The present thesis paves the way towards a scanning probe magnetometer based on Nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond that is suitable for the use in cryogenic environments.

The operation principles of performing magnetometry with lattice defects in diamond are demonstrated. Experiments under continuous wave optical excitation reveal the characteristic properties of the NV center that qualifies it as an ideal candidate for quantum sensing. The interaction with a static external magnetic field is extensively investigated by optically detected magnetic resonance spectroscopy (ODMR). Pulsed excitation is used to explore the dynamics of the electron spin in the NV center.

The anisotropy of the electric dipole moments in the defect allow for selective excitation of NV centers depending on their crystallographic orientation. The correlation of ODMR resonances with NV centers along specific crystallographic axis is demonstrated by the combination of laser polarisation control and diamond samples exhibiting (111)-orientated facets. Proper polarisation of the microwave field increases the selectability. Hence, all components of a three dimensional magnetic field vector can be determined unambiguously. The determination of the sign of the vector components can be enabled by controlling the chirality of the microwave field.

The investigation of stray fields of a Cobalt microstructure exemplifies the principle of polarization-assisted magnetometry. The mapping of the stray field occurred by a rasterscan of the optical excitation along the microstructure. The method allows for the detection of magnetic field variations of less than $10\mu\text{T}$. The spatial resolution is diffraction limited to less than 800nm. The following efforts are motivated by the intention to push the limit further down to the nm-scale.

The demand for an appropriate microwave emitter is satisfied by a systematically designed printed circuit board antenna. The antenna design is based on results of finite-element numerical modeling. Using an ensemble of NV centers as microwave sensor, subsequent experimental examinations confirm the simulated frequency dependencies and field distributions of the antennas.

The use of conventional nitrogen implantation techniques and nanostructuring of diamond samples confines the spatial distribution of the NV centers inside the crystal. The processing shifts consequently the limit of achievable spatial resolution in an optical magnetic field measurement beyond the diffraction limit of the exciting laser beam towards the structure size of the diamond.

The combination of a tuning fork-based atomic force microscope (AFM) and the

nanostructured diamond renders it possible to benefit from the improved spatial resolution. The positioning system of the AFM allows for precise position control of the diamond on the orders of few tens of nanometers. The design is chosen to facilitate optical illumination, microwave manipulation, optical readout and fine positioning of the NV sensor simultaneously. The system is operational at low temperatures without any further adjustments. The appendix of the thesis gives a detailed description of the developed system and of the standard ODMR setup used for room temperature measurements.

Danksagungen

An dieser Stelle möchte ich den Personen danken, ohne welche die Durchführung dieser Doktorarbeit in dieser Form nicht möglich gewesen wäre:

- Prof. Dr. Laurens W. Molenkamp für die Möglichkeit zur Promotion
- Prof. Dr. Wolfgang 'Sepp' Ossau und Dr. Tobias Kießling für ihre Betreuung
- Prof. Dr. Hartmut Buhmann für die Möglichkeit, ein Setup zur optischen Spektroskopie an Diamant im Rahmen des F-Praktikums aufzubauen
- Prof. Dr. Amir Yacoby, Prof. Dr. Patrick Maletinsky und besonders Dr. Mike Grinolds sowie Dr. Sungkun Hong für die Einführung in die Physik der NV-Zentren
- Dr. Johannes Kleinlein und Dr. Tanja Borzenko für die Lithografie der Diamanten
- Den Mitarbeitern der verschiedenen Abteilungen der wissenschaftlichen Werkstätten des Physikalischen Instituts
- Steffen Bieker und Tobias Henn für ihre großartige Gesellschaft innerhalb und außerhalb des Büros
- meinen Eltern für ihre fortwährende Unterstützung
- meiner Freundin Judith, für die zahllosen wunderbaren Momente während der letzten Jahre

Versicherung an Eides statt

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation selbständig und ohne Hilfe eines Promotionsberaters angefertigt und keine weiteren als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Weiterhin versichere ich hiermit an Eides statt, dass ich die Gelegenheit zum Promotionsvorhaben nicht kommerziell vermittelt bekommen habe und insbesondere keine Personen oder Organisationen eingeschaltet habe, die gegen Entgelt Betreuer bzw. Betreuerinnen für die Anfertigung von Dissertationen sucht.

Außerdem erkläre ich hiermit, dass ich die Regeln der Universität Würzburg über gute wissenschaftliche Praxis eingehalten habe.

Die Dissertation wurde bisher weder in gleicher noch in anderer Form in einem anderen Prüfungsfach vorgelegt.

Würzburg, 22. Dezember 2015

Franz Münzhuber