Kurzbericht zum Vorhaben Venus / 13N15972

Ursprüngliche Aufgabenstellung

Die Aufgabenstellung war der Aufbau einer molekül-basierten Einzelphotonenquelle mit gepulster und Dauerstrich-Anregung. Da Moleküle, anders als viele andere Quellen, die gleichzeitige Implementation von Schmalbandigkeit sowie hoher Zählrate erlauben, sollte ein solches System in der Lage sein, die spektral hellste Einzelphotonenquelle der Welt zu implementieren. Die vor dem Projekt bestehenden Raten waren auf etwa 1 Millionen Klicks pro Sekunde limitiert.
Solche Quellen erlauben die Implementation von quantenoptischen Primitiven, Quantennetzwerken und sind relevant für die Kalibration von verschiedenen Detektoren.

Ablauf des Vorhabens

Das Vorhaben benötigte spezifische experimentelle Aufbauten. Die Beschaffung war ein relevanter erster Schritt, gefolgt von einer Software-Implementation. Danach wurde das Mikroskop im Kryostaten mit einer Zieltemperatur von 1.1 K aufgebaut. Hierbei wurden verschiedene Schritte für eine optimale Sammlungseffizienz getätigt – beispielsweise die Integration und die Verkleinerung des experimentellen Aufbaus.
Es wurden verschiedene Anregungsmethoden entwickelt – am wichtigsten sind die Dauerstrich- und die kontinuierliche Anregung, welche bereits im Projektvorschlag benannt wurden. Dazu wurden Sättigungskurven und Linienbreitenmessungen im Dauerstrichbetrieb aufgenommen. Bei Messungen der Autokorrelationsfunktion konnte ein sehr guter Wert von $g^{(2)}(0)$ von 0.8% gemessen werden. Zudem wurden bei erhöhter optischer Anregung Rabi-Oszillationen beobachtet. Bei der gepulsten Anregung wurden Rabi-Rotation etabliert und die Anregung mit einem Pi-puls ermöglicht.

wesentliche Ergebnisse

Es wurde eine sehr helle und sehr saubere Einzelphotonenquelle im Projekt aufgebaut. Die Ergebnisse kombinieren die schmalbandige Natur der kryogenen Moleküle und die gleichzeitig hohen Zählraten. Mit der nun optimierten Sammlungseffizienz wurden die Werte vor dem Projektvorschlag um den Faktor von etwa 2-4 erhöht. In neuartigen gepulsten Messungen – welche im selben Zeitraum auch von einer italienischen Gruppe realisiert werden konnten – zeigen ein quasi ideales Verhalten der Einzelphotonenquelle. Für eine dem Projekt folgende Kommerzialisierung sind aktuell die molekularen Proben im Rahmen eines Materialforschungsprojekts noch weiter zu optimieren.
Nach unserer Erkenntnis ist die in Hannover implementierte Quelle aktuell die hellste Quelle mit einer echten Zählrate von mehreren Millionen Klicks pro Sekunde bei gleichzeitig wenige Megahertz breiter Emissionsbreite. Dies übersteigt das Frequenz-Bandbreitenprodukt von Quellen mit sogenannten Quantenpunkten leicht. Hierbei wurden Zählraten von knapp 10 Mio Klicks pro Sekunde realisiert, jedoch bei einer ca. 30 fach höheren Lininenbreite.

Ausführliche Darstellung der durchgeführten Arbeiten im Projekt 13N15972

Grundlagen

Das Projekt „Venus“ hat zum Ziel die hellste Einzelphotonenquelle der Welt zu bauen. Hierbei handelt es sich um ein einzelnes fluoreszierendes organisches Molekül im Fokus eines Konfokalmikroskops. Die optimalen Eigenschaften werden durch eine tiefe Temperatur nahe des absoluten Nullpunkts und durch eine optimierte Sammlungseffizienz mithilfe eines optimierten Mikroskopobjektivs erreicht.
Das Projekt hat wesentliche Schritte hin zur optimalen Nutzung und auch zur Kommerzialisierung von molekülbasierten Einzelphotonenquellen erbracht. Die Ergebnisse sind in diesem Bericht ausführlich dargestellt. Die Darstellung orientiert sich an der zeitlichen Abfolge der einzelnen Arbeitsschritte, an den wesentlichen Einzelkomponenten und zudem an den Einzelergebnissen des Projekts.

Beschaffung

Im Projekt Venus wurde unmittelbar nach Projektbeginn mit der Beschaffung begonnen. Ein großer Teil der Optik (Linsen/Spiegel/Fasern) der Einzelphotonenquelle konnte von normalen Optikanbietern bezogen werden – insbesondere, da es sich um ein Forschungsgerät handelt bei dem die Optimierung im Bereich der Sammlungseffizienz, d.h. im Detektionsstrahlengang, liegt. Hierbei wurden Optikparameter gewählt, welche sich in makroskopischer Optik ideal optimieren lassen (d.h. achsennahe Strahlen, große Strahldurchmesser, Gauss’sche Strahlen, etc.).
Bei einem Teil der Systeme waren spezielle Anpassungen gewünscht, um ein optimales Ergebnis zu erzielen.
Hierbei waren genaue Abklärungen zur Ausführung des Kryostats, der Detektoren und der beiden Lasersysteme zu evaluieren und entsprechend mit den Herstellern zu diskutieren.
Beim **Lasersystem** (gepulst und Dauerstrich) wurde auf eine flexible Nutzbarkeit geachtet, auch dass eine verschiedenartige optische Anregungen des Einzelmoleküls realisiert werden kann. Zudem haben die Systeme genug Leistungsreserven, sodass auch andere Moleküle im System genutzt werden können. Das System ist auf das Molekuel DBATT (Dibenzanthanthrene) optimiert. Das Molekül hat eine Nullphonenlinie bei 589 nm, kann aber alternativ auf 581 nm angeregt werden. Als Alternative bietet sich z.B. das Molekül Terrylen an, welches bei 578 nm seine Nullphonenlinie hat. Die Anregung in höherliegende vibratorische Niveaus kann jedoch leider mit dem beschafften Laser bei diesen System nicht mehr erfolgen (da ca. bei 564 nm liegend). Im Bezug auf die Beschaffung des Lasers bezieht es sich vor allem auf den erweiterten Wellenlängenbereich, welcher bei beiden Systemen auf 575 bis 595 nm spezifiziert ist. Hierbei fallen am Rand der Bereiche jedoch die Leistungsreserven entsprechend ab. Im optimalen Arbeitsbereich, d.h. bei ca. 585 nm, wurde auf ca. 1 Watt Dauerstrichleistung und >10W Puls-Peakleistung spezifiziert. Die Leistungsreserven erlauben nicht alleine die Verbreiterung des Wellenlängenbereiches, sondern auch die Optimierung der Intensitätsstabilisierung der Ausgangsleistung der Laser. Zudem ist hierbei ein erweiterter modensprungfreier Scanbereich gegeben (ca. 40 GHz). Sämtliche Laserparameter wurden im Experiment überprüft und entsprechend experimentell nachgemessen. Zur Charakterisierung wurde auch ein einzelnes Molekül genutzt (siehe unten).

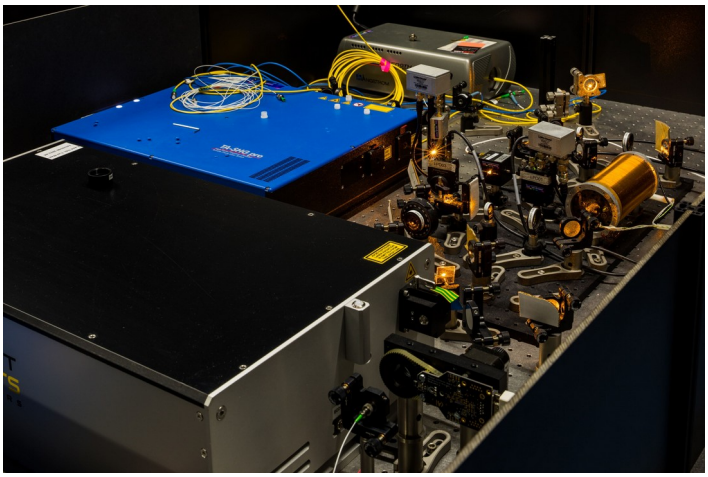

Figure 1: Das Puls- und Dauerstrichlasersystem (vorne und hinten), sowie die beigesteuerte Spektroskopie zur Resonanz mit atomarem Natrium.

Das **Dauerstrich-Lasersystem** benötigte eine schmalbandige Stabilisierung auf deutlich unter 1 MHz Linienbreite. Hierbei ist dieser Laser das zentrale Werkzeug die Linienbreiten des Molekülmodells zu vermessen. Natürlich darf die Linienbreite des Messgeräts nicht die Linienbreite des Moleküls überschreiten bzw. verfälschen.
Beim **Pulslasersystem** sind die Pulslänge, die Repetitionsrate, aber auch das Signal-zu-Hintergrundsverhältnis im Fokus der Spezifikationen.
Bei der **Pulslänge** wurde darauf geachtet, dass die Pulse deutlich kürzer sind als die zu erwartende T_1-Zeit des Systems (ca. 5-20 ns). Damit ergeben sich Pulslängen im Bereich von 0.1 bis 1 ns. Ein zu kurzer Puls hätte hierbei die Spektren unnötig verbreitert, da weitere (ungewollte) Frequenzkomponenten auftreten. Dies ist in der aktuellen Konfiguration verhindert und der Puls ist weitgehend Fourier-limitiert.
Die **Repetitionsrate** wurde auf maximal 10 MHz gewählt. Dies garantiert einen Zerfall über ca. 5-10 x der T_1-Zeit des Systems, d.h. dass bei jedem Puls das anzuregende System mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit im Grundzustand ist.
Das **Signal-zu-Hintergrundverhältnis** muss für die geplanten Versuche mehr als 60 dB betragen, sodass eine (ungewollte) Anregung des Systems nicht erfolgen kann, wenn der Puls nicht aktiv ist. Dies konnte mit dem Hersteller des Systems geklärt werden, sodass eine nicht-lineare Verdopplung erst spät im Lasersystem erfolgt. Diese Verdopplung (von ca. 1178 nm auf 589 nm) optimiert das Signal-zu-Hintergrundverhältnis deutlich, da es sich um einen nicht-linearen Prozess handelt und wenn der infrarote Puls lediglich in der Intensität verringert wird, dann ergeben sich keine verdoppelten Photonen mehr.

Entwicklung Software

Nach der Beschaffung der Einzelkomponenten wurde die Software des Projekts entwickelt. Hierbei handelt es sich um eine weiterentwickelte Version der Software Qudi, welche in einer vorhergehenden Version (PI3-Diamond von der Uni Stuttgart) mit der Uni Ulm entwickelt wurde. Die Software wurde an die Gegebenheiten des neuen Experiments angepasst. Hierbei ist es insbesondere notwendig, die Experimentsteuerung für den Frequenzscan eines Lasersystems und gleichzeitig für ein XY-Laserscanning-System gleichzeitig nutzbar zu machen. Dies war in der Originalsoftware nicht vorgesehen, zumal die beiden Systeme auf verschiedenen optischen Tischen implementiert sind.
Insbesondere wurden zudem verschiedene Programm-Einzelkomponenten entwickelt, z.B. die automatisierte Leistungseinstellung oder spezielle leistungsabhängige Linienbreitenmessungen an dem Molekül. Insbesondere für die Messung der maximalen Emissionsrate („die hellste Einzelphotonenquelle der Welt“) ist das besonders wichtig. Durch die Optimierung des Strahlengangs sind auch einige Komponenten nicht dauerhaft im Strahlengang, sodass verschiedene Trigger bzw. Schalter im Programm angebunden werden mussten – so beispielsweise die Messung der Anregungsintensität, welche mit einem kontrollierten Klappspiegel erfolgt, welcher nur bei Bedarf automatisiert in den Strahlengang verfahren wird.

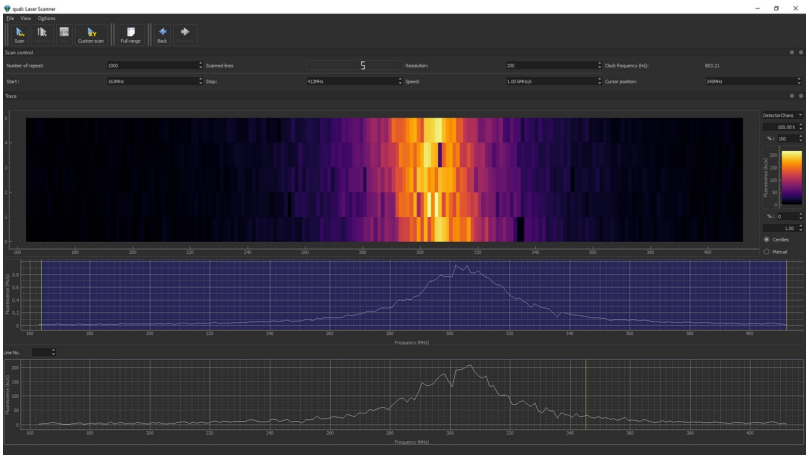

Figure 2: Die neu entwickelte Software im Frequenzscan über ein einzelnes Molekül.

Die Steuerung des Puls-Lasers erfolgt aktuell jedoch noch über die Software des Laserherstellers, ist aber für den Betrieb über SCPI-Befehle vorbereitet. Auch hier bietet sich in einem Nachfolge-

projekt an, dass eine grafische Benutzeroberfläche (GUI) fuer diesen Teil des Experiment entwickelt wird.
Die Integration der Zeitstempel-Einheit in den Mikroskopie und gleichzeitig Quantenoptik-Einsatz im Experiment benötigte einige Zeit, da sowohl die optischen Scanbilder (laterale Mikroskopie-Bilder), als auch das Antibunching, als auch die gepulsten Messungen über die selbe Einheit vermessen werden. Ein Zählen der Photonenevents mithilfe der vorher vorgesehenen Messkarte im Computer erfolgt nicht mehr. Dies optimiert die Messungen, da nicht mehr mehrere verschiedene Messgeräte mit den Einzelphotonendetektoren verbunden sein müssen.

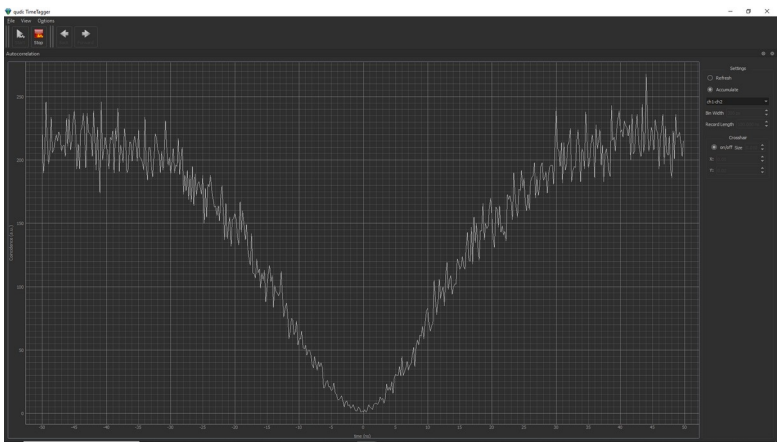

Figure 3: Eine sehr optimale Einzelphotonenquelle konnte mit der neuen Software nachgewiesen werden.

Inbetriebnahme Detektoren

Zudem wurden die supraleitenden Detektoren in Betrieb gestellt. Aus arbeitstechnischen Gründen, z.B. die akustische Belastung der Mitarbeitenden, wurden diese Detektoren in einem Nebenraum installiert. Dies war notwendig wegen der Kühlung der Detektoren auf ca. 3-4 K. Daher gab es hierbei einige Anlaufschwierigkeiten, da z.B. die aktuelle Temperatur oder die Belegung der einzelnen Detektoreingänge im Nachbarraum nicht immer bekannt war. Zudem war der initial vom Hersteller verbaute Fasereingang nicht optimal, da Restlicht am Faserverbinder eintreten konnte. Hierbei entstanden störende zusätzliche Zählimpulse (Background), welches die Ergebnisse verfälscht hat. Nach einigen Iterationen konnte der Detektor im Experiment optimal genutzt werden.
Es wurde eine neue Faserkopplung mit einem Faser-Strahlteiler installiert. Hierbei wurde auf das System FC-APC gesetzt, welches in der Experimentalphysik sehr verbreitet ist.
Die Faserkopplung vom Detektor ist jedoch nur der eine Teil welcher für die optimale Sammlung von Einzelphotonen benötigt wurde – zudem wurde die Einkopplung in Einzelmodenfasern direkt am Experiment optimiert. Dieser wesentliche, aber auch sehr arbeitsaufwändige Schritt ist weiter unten diskutiert, da er eng mit der Entwicklung einer erhöhten Zielemissionsrate verknüpft ist.

Inbetriebnahme Kryostat

Der Kryostat ist ein spezifisch für das Experiment entwickeltes System, welches optische Messungen bis hinab zur Temperatur von 1.0 K erlaubt. Hierbei sollte ein optischer Zugang gewährleistet bleiben – gleichzeitig darf sich durch einen solchen Zugang nicht der Wärmeeintrag in das System erhöhen. Das System erweitert die Erfahrungen des Teams so hingehend, dass zuvor durchgehend mit sogenannten Badkryostaten in superfluiden Helium gearbeitet wurde.
Der Kryostat wurde speziell für die Arbeitsgruppe entwickelt. In Zusammenarbeit mit dem Anbieter wurden konstruktionsbedingte Unzulänglichkeiten und Probleme mit dem Kryostaten an das Start-Up gemeldet welches den Kryostaten zugeliefert hat. Das System kühlt innerhalb von wenigen Stunden von Raumtemperatur auf 1 K ab. Die in der Probe genutzte Shpolskii-Matrix basiert auf einer schnellen Kristallisation einer organischen Flüssigkeit (*n*-Tetradekan, $C_{14}H_{30}$). Hierbei muss ein schnelles Abkühlen gewährleistet sein. Andernfalls verbreitern sich die Spektrallinien ungewollt, da die Matrix durch und durch kristallisiert. Damit kommt es beim langsamen Abkühlen zu einer Entmischung über das chemische Potenzial. Die verschiedenen Methoden des Herunterkühlens wurden experimentell optimiert. Hierbei wurde – auch in enger Zusammenarbeit mit dem Hersteller des Kryostaten – ein geeignetes Prozedere für den Abkühlungsprozess entwickelt.
Der Kryostat ist als in sich geschlossenes System konstruiert, sodass keinerlei Heliumverluste auftreten können. Zudem bietet das System einen optischen Zugang von vier Seiten über 50 mm große

optische Fenster mit einer idealen Antireflexionsbeschichtung, welche für die Zielwellenlänge von 589 nm deutlich weniger als 1% Reflexionsverluste hat. Da es sich durch die thermische Abschirmung ergibt, dass hierbei mindestens 4 Fenster eingesetzt werden müssen, ist die Optimierung der Fenster natürlich sehr wichtig. Hierbei wurde zudem darauf geachtet, dass die Fenster robust genug sind, dass keinerlei Probleme bei der Reinigung des Fensters auftreten.

Figure 4: Aufbau im Kryostaten. Hierbei ist die Relais-Linse (links) zu sehen, als auch die Solid Immersion Lens (SIL) rechts im Bild. Diese sitzt auf einem Aktuator. Im Hintergrund ist eine Heliumleitung zu sehen, welche garantiert, dass das System im Helium-Puffergas auf einer Temperatur von ca. 1-1.1 K gehalten wird.

Einbau Mikroskop

Beim Aufbau der Optik für das Mikroskop wurde auf kurze optische Wege und geringste Verluste geachtet. Hierbei fiel auf, dass eine Konstruktion des Mikroskops und des Strahlengangs sehr kompakt zu erfolgen hat. Dies resultiert aus den nicht-idealen Strahleigenschaften der Emissionsmode. Diese ist nicht gauss-förmig und kann somit nicht über einen langen Weg verlustfrei propagieren.

Neuaufbau Linsen und Optik-System

Das im Projekt geplante Optiksystem im Mikroskop wurde berechnet. Hierbei wurde auf die Sammlungseffizienz bei verschiedenen Orientierungen des molekularen Dipols geachtet. Eine solche Berechnung fundiert auf arbeiten der 1970er Jahre (Lukosz, 1978). Es ist offensichtlich, dass bei geeigneter Konstruktion der Optik ein Großteil des Lichts eingefangen werden kann. Dies bestätigt die Stoßrichtung und die Vorhersagen des Projektantrags.

Die Hoch-NA Optik Linse, konnte bislang nicht abschließend ausgeführt werden, da erste Vorversuche mit vergleichbarer Hoch-NA-Optik an starken Coma-Abberationen scheiterten. Die einbezogene Firma stellt aber seit 2022 erfolgreich integrierte Optiken her.
Als Alternative konnte ein weiteres kommerziell verfügbares Linsensystem genutzt werden. Hierbei ergibt sich eine numerische Apertur der Relais-Linse von 0.85.
Erst in einem weiteren Schritt kann die erhöhte Sammlungseffizienz für das Projekt Venus realisiert werden.

Probleme Scanspiegel

Ein größeres Problem im Projekt ergab sich durch den Einsatz des geplanten Scanspiegels. Der Hersteller des Systems wurde gebeten den auf dem Scanspiegel eingesetzten Spiegel auf der Scanplattform durch einen besseren Spiegel mit weniger Reflexionsverlusten zu ersetzen. Leider wurde jedoch beim Zusammenbau der Spiegel vom Hersteller verwechselt, somit wurde ein qualitativ geringwertiger Spiegel eingesetzt. Das System war durch den Umbau jedoch auch derart fragil, dass es in kurzer Zeit defekt wurde und durch ein Ersatzsystem ersetzt werden musste. Die Diskussionen mit der Herstellerfirma waren nicht fruchtbar. Es wurde im Laufe des Projekts ein Ersatzsystem mit wechselbaren Spiegeln beschafft. Durch diese Flexibilität ist jedoch das neue System nicht mehr so schnell scanbar als das alte System. Das heißt, dass die Zeit für ein Mikroskopiebild erhöht ist.
Hierbei war es zudem notwendig die in der ersten Projektphase eingesetzte Software zu überarbeiten.

Außerordentlich geringes $g^{(2)}(0)$

Ein zentrales und wichtiges Ergebnis sind die optimalen Werte von einem sehr geringen Wert für die Photon-Photon Autokorrelationsfunktion in Dauerstrich- als auch in gepulsten Messungen. Die Messung analysiert die Wahrscheinlichkeit, dass sogenannte Photon-Koinzidenzen auftreten. Bei der idealen Einzelphotonenquelle kommen die Photonen alle nacheinander und sind quasi aufgereiht wie bei einer Perlenkette. Die entsprechende Messgröße ist hierbei die normalisierte Autokorrelationsfunktion, welche in einem Schema nach Hanbury-Brown und Twiss aufgenommen wird. Hierbei werden zwei Detektoren genutzt und die Wahrscheinlichkeit eines gemeinsamen, u.U. zeitverzögerten Auslösens dieser Detektoren wird histogrammiert. Dies entspricht dem Quadrat der Wahrscheinlichkeiten des Aussendens von zwei Photonen der Quelle zu einem gleichzeitigen Moment.

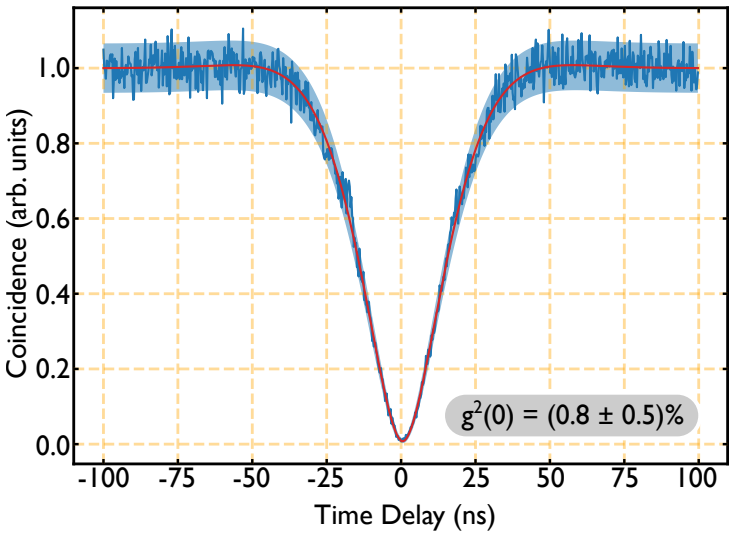

Figure 5: Photon Anti-Bunching mit sehr guter Einzelphotonenreinheit. Ein Wert von unter 1% ist nur bei sehr guten Detektoren oder bei sehr geringem Hintergrund so aufzunehmen.

Bei einer idealen Einzelphotonenquelle und auch idealen Messgeräten treten keinerlei Koinzidenzen auf, d.h. immer wenn ein Photon gemessen wird, kann eine zweite Messung ausgeschlossen werden. In anderen Worten startet die Messung mit der Emission eines Photons und die Wahrscheinlichkeit einer erneuten Detektion wird zeitlich aufgenommen. Ist die (normalisierte) Wahrscheinlichkeit Nahe eins, bedeutet dies, dass es keine zeitlichen Korrelationen gibt: Die Emission eines Photons beeinflusst nicht die weitere Detektion eines weiteren Photons. Dies ist beispielsweise bei einem Laser der Fall: dieses „Photonen-Klon-Gerät“ emittiert Photonen nach einem rein stochastischen Schema und die Emission (und nachgeschaltete Detektion) eines Photons ändert nichts an dem Zustand des Systems. Dies ist vergleichbar mit einer Emission und Detektion von vollständig unkorrelierten Ereignissen. Eine solche Quelle ist nur sehr eingeschränkt für Anwendungen wie z.B. der Quantentechnologie geeignet.
Wenn die Photonen jedoch alleinig nacheinander detektiert werden können, liegt eine Einzelphotonenquelle vor. Hierbei gibt es keinerlei gleichzeitige Detektionsevents.

Erhöhte Zählraten

Ein zentrales Element des Projektes Venus war die Erhöhung der Emissions- und Detektionsrate der Einzelphotonenquelle. Hierbei geht es ganz konkret um die Erhöhung der Klickrate, d.h. wie viele Events pro Sekunde auch wirklich zu einem Klick führen. Im Vergleich zu großen Teilen in der Literatur ist dies ein sehr strenges Kriterium, da dort verschiedene Zählraten angegeben werden. Hierbei handelt es sich z.B. um den beta-Faktor, d.h. wie viele Photonen in die Detektionsmode emittiert werden.
Natürlich ergeben sich deutlich höhere Raten, selbst wenn diese Photonen durch Unzulänglichkeiten im Experiment nicht detektiert werden. Selbst wenn diese (gedachten, theoretischen) Raten deutlich höher sind, ist in einem Experiment oder in einer Anwendung wie der Quantenkryptographie nicht mit einer erhöhten Geschwindigkeit, Bandbreite oder ähnlichem zu rechnen. Auch eine quantenmechanische Beschleunigung oder eine Erhöhung der Sensitivität ist nicht zu erwarten.
Im Experiment konnten nun erhöhte Raten von 3.5 Mio Counts pro Sekunde stabil gemessen werden. Weitere Experimente, gerade mit der sogenannten 0-1 Anregung sollten in einem Folgeprojekt etabliert werden.

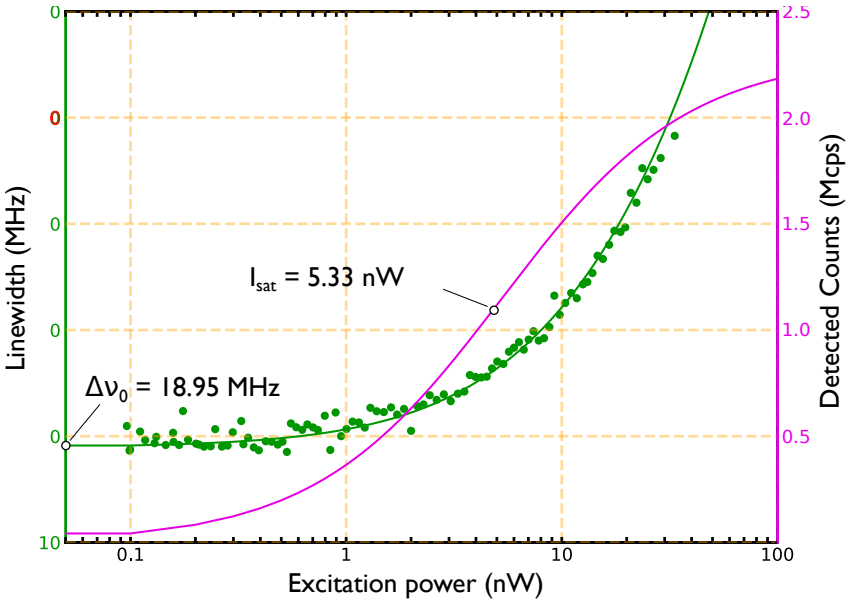

Figure 6: Linienbreite und Zählrate bei der CW-Anregung eines einzelnen Moleküls.

<u>erstmalige Aufnahme von Antibunching im gepulsten Modus</u>

Ein wesentliches neues Element war die Nutzung eines Pulslasers. Hierbei konnten mit Fourier-limitierten Pulsen verschiedenartige Anregungen eines einzelnen Moleküls erzielt werden. Insbesondere ist die Aufnahme von gepulsten Autokorrelationsfunktionen an einem Molekül relevant, wenn die Einzelphotonenquelle in einer technischen Anwendung eingesetzt werden soll. Ein optischer Pi-puls überführt das Molekül idealerweise in den angeregten Zustand, welches daraufhin mit der Emission eines einzelnen Photons relaxiert. Diese Experimente konnten erstmalig und in hoher Qualität an einem Einzelmolekül implementiert werden.

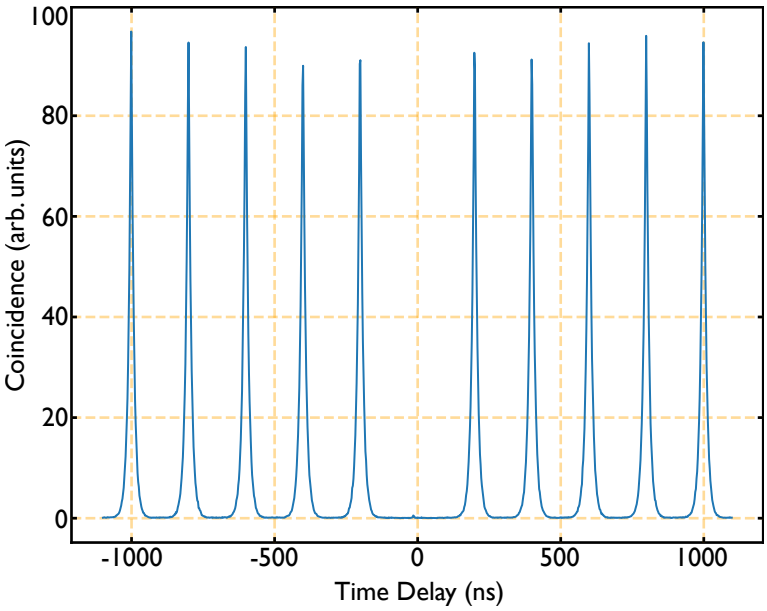

Figure 7: Photon-Photon Korrelationsfunktion der gepulsten Anregung eines einzelnen Moleküls.

<u>erstmalige Rabi-Rotationen</u>

Bereits vor einiger Zeit konnten Rabi-Rotationen im Experiment gezeigt werden. Im Venus-Projekt konnte dies bereits zu einer ersten Publikation führen, in dem mithilfe der Ramsey-Spektroskopie

die Zerfallszeit und auch die innere Kohärenzzeit des Systems verschiedenartig vermessen werden konnte.

- Optical Ramsey spectroscopy on a single molecule
  Y. Wang, V. Bushmakin, G.A. Stein, A.W. Schell, I. Gerhardt
  Optica 9 (4), 374-378
  https://doi.org/10.1364/OPTICA.443727

Hierbei hat sich im Projekt Venus als ein weiteres Ziel die Implementation einer Zweiphotonenquelle ergeben. Dies könnte sogenannte Zustände höherer Ordnung realisieren, welche wiederum weitere quantenoptische Experimente ermöglichen.

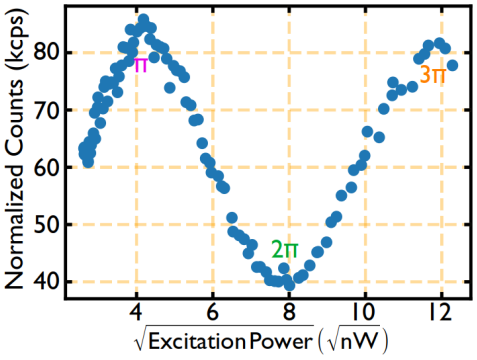

Figure 8: Rabi-Rotationen unter gepulster Anregung mit dem im Projekt genutzten Pulslaser. Es kann somit eine Einzelphotonenquelle realisiert werden bei der ein einzelner Laserpuls das Molekül anregt und ein einzelnes Photon emittiert wird.

0-1 Anregung

Die 0-1 Anregung kann dazu genutzt werden die Photonen der Nullphononenlinie zu extrahieren. Hierbei ergibt sich das Problem der unterschiedlichen Wellenlängen, da diese, gerade bei der Hoch-NA-Optik zu relevanten Aberrationen führen. Die 0-1 Anregung konnte im Projekt realisiert werden.

Nutzbarkeit des Ergebnisses

Die im Projekt erzielten Erkenntnisse sind relevant in der Grundlagenforschung und der Nutzbarmachung und Weiterentwicklung von molekül-basierten Quellen in Wissenschaft und Technik. Hierbei sind Einzelphotonenquellen die Basis für sichere Kommunikation in der Quantenkryptographie. Hierbei wird genutzt, dass ein Photon, wenn es einmal vermessen ist, nicht ein zweites Mal gemessen werden kann. Das Gebot, dass die vom Photon getragene Information nicht einfach geklont werden kann (Non-Cloning-Theorem) garantiert daher, dass der zwischen den legitimen Parteien (meist als „Alice & Bob“ in der Kryptographie bezeichnet) geteilte Zufallsschlüssel für eine nachfolgende verschlüsselte Übertragung von Daten nicht einer Drittpartei bekannt sein kann. Dieser Informationsvorsprung vom legitimen Empfänger einer Nachricht kann informationstheoretisch nachgewiesen werden.
Eine solche Anwendung ist aktuell denkbar und wird bereits in anderen Ländern kommerziell verwertet. Hierbei ist die bereits genannten Ausgründung „Quandela“ aus Paris, Frankreich zu nennen. Die in Frankreich hergestellten Quellen sind bereits in derartigen quantenkryptografischen Anwendungen genutzt. Der Markt ist – gerade auch bei den aufkommenden Quantencomputern – ein wichtiger Zukunftsmarkt.
Aktuell gibt es in Deutschland keinerlei kommerziell verfügbare Quellen. Für ein nachhaltiges Geschäftsmodell sind weitere Abklärungen und Forschungen zu leisten. Insbesondere ist es relevant den Markt noch entsprechend breiter aufzustellen.
Ein weiteres wichtige Fachgebiet ist die Nutzung von Einzelemittern im optischen Quantencomputing. Hierbei sind Nichtlinearitäten von Nöten, welche bereits bei wenigen Photonen schalten können. Solche „Kerr-Nichtlinearitäten“ sind die Bausteine von optischen Gates und weiteren Bausteinen von Quantencomputern.
Neben diesen in der Informationstheorie relevanten Anwendungen ergeben sich noch weitere Anwendungen im Bereich der Quantenphotonik und der Mikroskopie.
Einerseits ist es möglich mit Einzelphotonenzuständen spezielle Messprinzipien auszunutzen, welche bei sehr geringer Lichtintensität ein Maximum an Information in einer Sensoranwendung beinhalten können. Die Nebengebiete, insbesondere die Mikrobiologie, welche auf hochgenaue optische Mikroskopie setzt, werden durch die Forschung an mikroskopischen Einzelphotonenquellen befördert.

Neben den genannten Anwendungen ist ein Einsatz einer kalibrierten Quelle in der Technik relevant. Hierbei sind während der Projektlaufzeit auch enge Kontakte zur Physikalisch Technischen Bundesanstalt geknüpft worden. Hierbei geht es vor allem um den Einsatz der Quellen in der Metrologie und Kalibration von Photodetektoren.

neue Ergebnisse im Feld

Das Feld der molekül-basierten Einzelphotonenquellen ist klein. Daher sind die Veröffentlichungen in diesem Bereich limitiert.

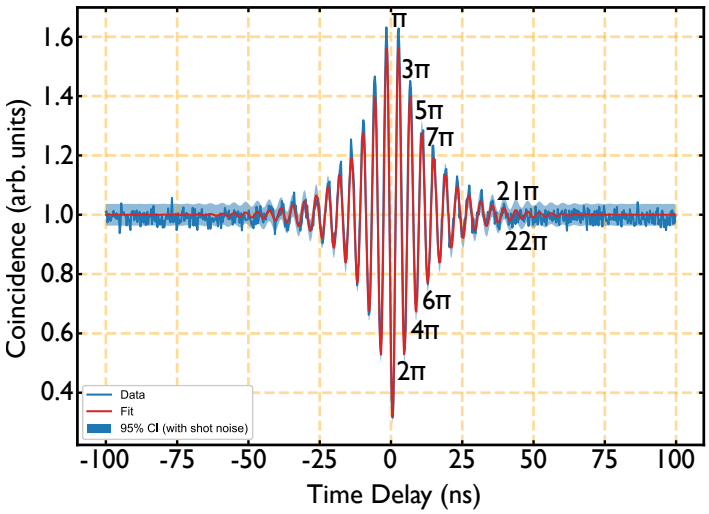

Figure 9: Rabi-Oszillationen unter der starken resonanten Anregung mit Hilfe des Lasers. Hierbei ergeben sich Rabi-Oszillationen, welche zeitlich verfolgt werden können.

- High-resolution vibronic spectroscopy of a single molecule embedded in a crystal
  Johannes Zirkelbach, Masoud Mirzaei, Irena Deperasińska, Boleslaw Kozankiewicz, Burak Gurlek, Alexey Shkarin, Tobias Utikal, Stephan Götzinger, Vahid Sandoghdar
  J. Chem. Phys. 156, 104301 (2022)
  https://doi.org/10.1063/5.0081297
  wissenschaftliche Einordnung: Die Studie der Gruppe vom MPL in Erlangen ist sehr interessant für weitere Anregungsschemata von Molekülen unter kryogenen Bedingungen. Hierbei wurde ein zweiter Laser genutzt um die einzelnen Vibrationsniveaus zu detektieren. Der Vergleich mit den Spektrum eines normalen Gitterspektrometers zeigt auf, dass die im Projekt Venus bestehende Infrastruktur vermutlich ausreicht um weitere Anregungsmöglichkeiten, z.B. hin zu Anregungen von höher gelegenen vibratorischen Niveaus zu realisieren.

- On-chip interference of scattering from two individual molecules
  Dominik Rattenbacher, Alexey Shkarin, Jan Renger, Tobias Utikal, Stephan Götzinger, and Vahid Sandoghdar
  Optica Vol. 10, Issue 12, pp. 1595-1601 (2023)
  https://doi.org/10.1364/OPTICA.502221
  wissenschaftliche Einordnung: Die Arbeit beschreibt die Integration von Emittern in Wellenleitern und deren nachgeschaltete optische Interferenz in einem quantenoptischen Experiment. Dies ist fuer die Integration sehr relevant. In der Kombination mit atomoptischen Experimenten mit Natrium, z.B. auch in einem Wellenleiter, koennten diese Ergebnisse relevant werden.

- High-Resolution Cryogenic Spectroscopy of Single Molecules in Nanoprinted Crystals
  Mohammad Musavinezhad, Jan Renger, Johannes Zirkelbach, Tobias Utikal, Claudio U. Hail, Thomas Basché, Dimos Poulikakos, Stephan Götzinger, Vahid Sandoghdar
  ACS Nano 2024, 18, 33, 21886–21893
  https://doi.org/10.1021/acsnano.4c02003
  wissenschaftliche Einordnung: Hierbei handelt es sich um eine technische Weiterentwicklung bei der die Moleküle nicht in einer flüssigen Matrix vorgelegt werden aus der in einem weiteren Arbeitsschritt eine Shpolskii-Matrix gebildet wird, sondern es wird in einem Druckprozess ein ganzes Array von Emittern gedruckt. Die nachgeschaltete Untersuchung

der Laseranregungsspektren und auch deren Fourier-limitierten Linienbreite ist sehr interessant für das Projekt Venus, da es eine interessante Alternative zum bestehenden und etablierten Probenherstellungsprozess bedeutet.

- Triggered emission of indistinguishable photons from an organic dye molecule
  Pietro Lombardi, Maja Colautti, Rocco Duquennoy, Ghülam Murtaza, Prosenjit Majumder, Costanza Toninelli
  Appl. Phys. Lett. 118, 204002 (2021)
  https://doi.org/10.1063/5.0048567
  wissenschaftliche Einordnung: Die gepulste Anregung konnte bei einem groesseren Molekül auch mithilfe eines einfachen Dioden-Pulslasers implementiert werden. Diese Experimente sind für die technische Implementation sehr relevant – allerdings lassen sich die Experimente durch das andere genutzte Molekül im Projekt Venus (DBATT statt DBT) nicht implementieren.

- Coherent characterisation of a single molecule in a photonic black box
  Sebastien Boissier, Ross C. Schofield, Lin Jin, Anna Ovvyan, Salahuddin Nur, Frank H. L. Koppens, Costanza Toninelli, Wolfram H. P. Pernice, Kyle D. Major, E. A. Hinds & Alex S. Clark
  https://doi.org/10.1038/s41467-021-20915-z
  wissenschaftliche Einordnung: ein theoretisches Papier aus der Gruppe von Alex Clark, welcher nun in Bristol ist. Hierbei geht es um kohärente Versuche, auch mit einem einzelnen Molekül. Die Ergebnisse sind von theoretischem Interesse, jedoch für die Projektziele im Projekt Venus nur von theoretischer Bedeutung.

Sämtliche benannten Ergebnisse sind für die weitergehende Forschung im Projekt Venus relevant, schmälern aber nicht die im Projekt benannten Projektziele.

geplante Veröffentlichungen

Das Projekt zielt nach wie vor auf die Erhöhung der Zählraten einer nutzbaren Einzelphotonenquelle ab. Hierbei sind bereits verschiedene Publikationen in der Planung, welche nur mit den aus dem Projekt etablierten experimentellen Aufbau realisiert werden können:

- Anregung eines einzelnen Moleküls mithilfe des SUPER-schemes.
- Anregung eines einzelnen Moleküls mit einem Pulslaser und Nutzung der Photonen in einem quantenoptischen Experiment

Nutzung der Ergebnisse in Lehre und Forschung

Die Vorlesung „Single Photons – from science to applications“ wurde parallel zum Projekt Venus etabliert und jeweils im Sommersemester gehalten. Dies war in den Jahren 2022, 2023 und 2024. Hierbei wurde vielfältig auf die Ergebnisse im Experiment und auch in der Theorie auf die Erkenntnisse aus dem Projekt Venus zurückgegriffen.
Aktuelle Schritte im Experiment, z.B. die gepulste Anregung, konnten direkt in der Vorlesung aufgegriffen und gemeinsam berechnet werden.

Erfolgskontrollbericht zum Projekt 13N15972

wissenschaftlich-technische Ergebnis

Es wurde eine sehr helle und eine spektral sehr saubere Einzelphotonenquelle im Projekt aufgebaut. Die Ergebnisse kombinieren die schmalbandige Natur der kryogen spektroskopierten Moleküle und gleichzeitig hohe Zählraten, welche weltweit einzigartig sind. Im Projekt Venus konnten die im Projektvorschlag benannten Linienbreiten von unter 20 MHz realisiert werden. Gleichzeitig konnte die Zählraten um mehr als einen Faktor von 2-3 erhöht werden. Dies entspricht etwa einer Verkürzung der Messzeiten in vielen quantenoptischen Protokollen um den Faktor 5-10. Ein weiterer Faktor von 10 wäre hier wünschenswert und erscheint auch für zukünftige Arbeiten als durchaus denkbar.

In neuartigen gepulsten Messungen – welche im selben Zeitraum auch von einer italienischen Gruppe realisiert werden konnten – zeigen ein quasi ideales Verhalten der Einzelphotonenquelle durch geringe (ungewollte) Koinzidenzraten von Photonen. Es wurde die Zählraten, die Linienbreiten, und eine Photonenstatistik vermessen, welche kaum doppelte Photonenevents aufzeigt (Statistisch signifikant weniger als 1%). Derartig reine Einzelphotonenquellen konnten bislang nicht in der genannten Qualität bei Molekülen realisiert werden. Die Stabilität der Moleküle ist insgesamt sehr gut und es lassen sich Experimente für Wochen mit den Molekülen realisieren – vergleichbar mit einzelnen Ionen in einer Falle.

Zudem wurden weitere Experimente mit sogenannter gekreuzter Polarisation und einem anderen Anregungsschema (resonante Anregung) durchgeführt. Diese Technik wurde bereits vom Antragsteller für Einzelemitter in der Vergangenheit erfolgreich implementiert. Allerdings ist aus ungeklärter Ursache die Qualität der im Projekt eingesetzten Shpolskii-Matrix nicht für dieses Schema geeignet, da deutlich mehr Streuung auftrat. Dieses Wissen und die verbundene Forschung übersteigt die im Projektvorschlag angestrebten Ergebnisse, unterstreicht jedoch die Notwendigkeit von Materialforschung, welche über den Projektvorschlag und die aktuelle Forschung hinaus geht.

Fortschreibung des Verwertungsplans

Der Verwertungsplan hat sich seit dem Projektantrag nur geringfügig verändert. Es sind höhere Fock-Zustände und andere quantenoptische Zustände in den wissenschaftlich-technischen Fokus gerückt. Allerdings konnten anfängliche Experimente zwei nacheinander emittierte Photonen zu realisieren bislang nicht abgeschlossen werden.

Patente Schutzrechte

Es wurden im Projekt keine Patente oder Schutzrechte angemeldet.

Wirtschaftliche Erfolgsaussichten

Die Implementation einer Einzelphotonenquelle, welche kommerziell verfügbar ist, bietet sich nach wie vor an. Lediglich die Firma Quandela aus Paris, Frankreich hat inzwischen eine solche Quelle bereits im Angebot. Die von uns aufgebaute Quelle liefert deutlich schmalbandigere und hellere Parameter – ist jedoch aktuell noch in einem Forschungsstadium, da sich die Forschenden auf die (quanten-)optischen Eigenschaften und technischen Voraussetzungen konzentriert haben. Es fehlt aktuell noch an einer deterministisch produzierbaren Probe bei der die Moleküle in einem „Bottom-Up Approach“ strukturiert werden können, sodass keine stochastische Auswahl von molekularen Übergängen erfolgen muss. Die hierfür notwendige Materialforschung sollte in einem anderen Konsortium (z.B. mit Materialwissenschaftler:innen, Chemiker:innen, weitergeführt werden) – dies wäre der Garant für eine nachgeschaltete und reproduzierbare Kommerzialisierung und laesst sich vermutlich innerhalb von drei Jahren realisieren. Aktuell werden Partner der TU Braunschweig für einen solche Probenaufbau genutzt. Es fehlt jedoch an dem „kritischen Momentum“, dass dies ein kommerziell erfolgreiches Projekt werden kann.

Für die Kommerzialisierung konnten aber wichtige Designparameter evaluiert und kritisch erforscht werden. Eine der größten Hürden hierbei ist die Kühlung auf Temperaturen unter 2.0 K, damit die störenden Phononen aus dem System ausgefroren werden können. Aktuell ist der Markt der Kryotechnik jedoch sehr in Bewegung,

was nicht zuletzt an dem Start-Up liegt, bei dem der Kryostat bezogen wurde. Die für das Projekt entwickelte Kryo-Lösung erweitert das Portfolio des Start-Ups hin zu Systemen mit höheren Temperaturen (mK → K) und großem Gasvolumen und Fenstern. Wir glauben, dass dies in den nächsten Jahren (3-5 Jahre) noch zu vergleichbaren und miniaturisierten Systemen führen wird.

Wissenschaftliche Erfolgsaussichten

Durch die Implementation der Quelle und der nun erhöhten Zählraten lassen sich neuartige quantenoptische Primitiven realisieren. Allerdings liegt aktuell der kurzfristige Fokus auf der weiteren Erhöhung der Zählraten, was nach unserer Einschätzung durchaus möglich sein sollte. In sofern haben sich die im Projektvorschlag angegebenen maximal denkbaren Werte nicht verändert. Daher wird je nach Weiterführung der Wissenschaft im Projekt dieser Schritt in der nächsten Zeit implementiert. Damit ist dann automatisch auch eine enge Verbindung zu den im Projektvorschlag angegebenen Zielen und wissenschaftlichen Fragestellungen gegeben.

Über den Projektvorschlag hinausgehend sind die Fragestellungen der höheren Fock-Zustände bereits oben benannt worden. Wie oben beschrieben sind unsere Verbindungen mit der TU Braunschweig nicht allein unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten zu betrachten (d.h. zu einer Kommerzialisierung), sondern auch ein wichtiges Forschungsprojekt, welches das gesamte Feld von einer Nutzung von stochastisch aufgebauten Quellen hin zu einem deterministischen „Bottom-Up Approach“ verschieben kann.

Anschlussfähigkeit

Das Projekt Venus hat im akademischen Kontext hohe Relevanz in der Grundlagenforschung und in der Verbindung zu den Quantentechnologien. Hierbei ergeben sich weitere Fragestellungen und Forschungsgegenstände. Neben den bereits oben benannten („higher order Fock-states“) sind die rein technisch, bzw. ingenieurtechnischen Fragestellungen immens – insbesondere was die Hoch-NA Optik und die Sammlungseffizienz einer einzelnen Linse angeht.

Arbeiten ohne Lösung

Die im Projekt zu implementierende Hoch-NA-Optik wurde nicht in dem Masse wie geplant aufgebaut. Es wurde eine kommerzielle Lösung mit einer NA=0.85 Linse implementiert.

Die Kalibration der Einzelphotonendetektoren wurde gegenüber einer optimalen Einkopplungslösung niedriger priorisiert. Daher sind Langzeitversuche bzgl. der Kalibration nicht durchgeführt worden.

Eingehaltener Zeitplan

Der Zeitplan im Projekt wurde eingehalten. Das Projekt, welches bis zum 31. August 2023 lief, wurde nochmals um 6 Monate verlängert, damit die Zählraten nochmals optimiert werden können. Das Gesamtziel des Vorhabens (Aufbau einer sehr hellen Einzelphotonenquelle) wurde vollständig erreicht – allerdings ist diese Quelle nur knapp über dem Zeit-Bandbreitenprodukt von Quantenpunkten und Ionen. Weitere Experimente, welche eine stabile Veröffentlichung und Erweiterung der Ergebnisse (vor allem der Zählrate) erlauben, werden nach Projektabschluss weitergeführt.

Das Arbeitspaket 4 wurde komplett bearbeitet und die Zählraten, Linienbreiten, Messung der Photonenstatistik, Lebensdauern, und die Stabilität der Moleküle wurde komplett bestimmt. Lediglich die Kalibration der Einzelphotonendetektoren ist noch großen Unsicherheiten unterworfen, da die optische Kopplung zur Quelle im Rahmen der Forschung häufig optimiert wurde und keine Langzeitmessungen vorgenommen wurden (s.o.).