

Band 025

Julia Brandel

# Supraleitende Einzelphotonenzähler

Optimierung der Zeitauflösung und  
Anwendungsbeispiele aus der Spektroskopie







Julia Brandel

## **Supraleitende Einzelphotonenzähler**

Optimierung der Zeitauflösung und Anwendungsbeispiele  
aus der Spektroskopie

HERAUSGEBER

Prof. Dr.-Ing. M. Noe

Prof. Dr. rer. nat. M. Siegel

Eine Übersicht aller bisher in dieser Schriftenreihe erschienenen Bände finden Sie am Ende des Buches.

# Supraleitende Einzelphotonenzähler

Optimierung der Zeitauflösung und Anwendungsbeispiele  
aus der Spektroskopie

von  
Julia Brandel

Karlsruher Institut für Technologie  
Institut für Mikro- und Nanoelektronische Systeme

Supraleitende Einzelphotonenzähler: Optimierung der Zeitauflösung  
und Anwendungsbeispiele aus der Spektroskopie

Zur Erlangung des akademischen Grades einer Doktor-Ingenieurin  
von der KIT-Fakultät für Elektrotechnik und Informationstechnik des  
Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) genehmigte Dissertation

von Dipl.-Ing. Julia Brandel, geb. in Karlsruhe

Tag der mündlichen Prüfung: 29. Oktober 2018

Hauptreferent: Prof. Dr. M. Siegel

Koreferent: Prof. Dr. M. Weber

## Impressum



Karlsruher Institut für Technologie (KIT)  
KIT Scientific Publishing  
Straße am Forum 2  
D-76131 Karlsruhe

KIT Scientific Publishing is a registered trademark  
of Karlsruhe Institute of Technology.  
Reprint using the book cover is not allowed.

[www.ksp.kit.edu](http://www.ksp.kit.edu)



*This document – excluding the cover, pictures and graphs – is licensed  
under a Creative Commons Attribution-Share Alike 4.0 International License  
(CC BY-SA 4.0): <https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/deed.en>*



*The cover page is licensed under a Creative Commons  
Attribution-No Derivatives 4.0 International License (CC BY-ND 4.0):  
<https://creativecommons.org/licenses/by-nd/4.0/deed.en>*

Print on Demand 2019 – Gedruckt auf FSC-zertifiziertem Papier

ISSN 1869-1765

ISBN 978-3-7315-0917-2

DOI 10.5445/KSP/1000091939





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1	Eigenschaften und Funktionsweise von SNSPD	5
2.1.1	Modelle zur Beschreibung des Verhaltens von SNSPD	6
2.1.2	Signalentstehung und kinetische Induktivität von SNSPD	9
2.1.3	Physikalische Ursachen des Detektorjitters	9
2.1.4	Optische Strahlungskopplung von SNSPD	10
2.2	Nationaler und internationaler Stand der Forschung	13
2.3	Zeitauflösung bei Einzelphotonenempfindlichkeit	14
2.3.1	Funktionsprinzip der zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung	14
2.3.2	Minimale Zeitauflösung, <i>Instrument Response Function</i> und <i>Timing-Jitter</i>	16
2.3.3	<i>Pile-up</i> -Effekte und Vermeidungsstrategien	17
2.3.4	<i>Soft- und Hardware</i>	19
2.4	Optische Fasern und ihre Eigenschaften	20
2.4.1	Fasertypen	21
2.4.2	Dispersionseffekte und ihre Ursachen	23
2.4.3	Laufzeit von Licht in Fasern	25
2.5	Floureszenz- und Ramanspektroskopie	25
2.5.1	Grundlagen der Fluoreszenzlebensdauer-Spektroskopie	26
2.5.2	Grundlagen der Raman-Spektroskopie	27
2.5.3	Resultierende Anforderungen an Detektoren	32
<b>3</b>	<b>Zeitauflösung von optischen Signalen mit SNSPD</b>	<b>33</b>
3.1	Vorstellung des eingesetzten Messsystems	33
3.1.1	Optischer Aufbau zur SNSPD Charakterisierung	34
3.1.2	Kryogenes System	35
3.1.3	Signalauskopplung	37
3.1.4	Einbau des Detektorchips	38
3.2	Charakterisierung des Messsystems	40
3.2.1	Beitrag einzelner Komponenten zum Systemjitter	40
3.2.2	Durchführung der Messung	42

3.3	Zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung mit SNSPD . . . . .	43
3.3.1	Wahl des Arbeitspunktes . . . . .	43
3.3.2	Musterhafte Untersuchung von jitter-beeinflussenden Parametern . . . . .	45
3.3.3	Untersuchung des Einflusses der kinetischen Induktivität auf die Zeitauflösung . . . . .	53
3.3.4	Diskussion und Optimierungsmöglichkeiten für hohe Zeitauflösungen . . . . .	74
<b>4</b>	<b>Spektroskopie: SNSPD in der Anwendung . . . . .</b>	<b>77</b>
4.1	Zeitaufgelöste Spektroskopie mit SNSPD . . . . .	78
4.1.1	Experimenteller Messaufbau . . . . .	78
4.1.2	Separation von Fluoreszenz und Raman-Streulicht . . . . .	80
4.1.3	Raman-Spektroskopie . . . . .	87
4.2	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	96
4.3	Optimierungspotential . . . . .	98
4.3.1	SNSPD . . . . .	99
4.3.2	Elektronik . . . . .	100
4.3.3	Kryogenes System . . . . .	101
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick . . . . .</b>	<b>103</b>
	<b>Veröffentlichungsliste . . . . .</b>	<b>107</b>
	Publikationen . . . . .	107
	Konferenzbericht . . . . .	108
	Konferenzbeiträge . . . . .	108
	<b>Literaturverzeichnis . . . . .</b>	<b>111</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis . . . . .</b>	<b>123</b>
	<b>Tabellenverzeichnis . . . . .</b>	<b>127</b>



# Abkürzungs- und Sachwortverzeichnis

$\alpha$	Polarisierbarkeit
$\Delta\omega$	Wellenzahl (Spektroskopie)
$\lambda$	Wellenlänge
$\lambda_c$	<i>Cut-Off</i> - Wellenlänge
$\mu$	Dipolmoment
$\mu(t)$	zeitlich veränderliches Dipolmoment
$\omega_q$	Schwingungsfrequenz der Normalmode q
$\sigma_i$	Erwartungswert einer Gauss-Verteilung
$\tau$	Transitzeit von Photon oder Puls durch eine Faser der Länge L
$\tau_{\text{Fenster,max/min}}$	maximale bzw. minimale Zeitfensterbreite bei TCSPC Messungen
$\tau_{\text{Slot,max/min}}$	maximale bzw. minimale Zeitlotbreite denen einzelne Photonen zugeordnet werden können bei TCSPC Messungen
$\tau_{100\%}$	Zeit nach der mit einer Wahrscheinlichkeit von 100% ein Photon detektiert wird
$\tau_L$	Lebensdauer der Fluoreszenz
$\Theta_{\text{max}}$	Akzeptanzwinkel beim Einkoppeln in eine Faser
$E$	elektrisches Feld
$E_{vq}$	Schwingungsenergie der Normalmode
$f_{\text{eff}}$	effektive Bandbreite
$n$	Brechungsindex
$n(\lambda)$	wellenlängenabhängiger Brechungsindex
$n_K$	Brechungsindex des Kernmaterials einer Glasfaser
$n_M$	Brechungsindex des Mantelmaterials einer Glasfaser
$v_g$	Gruppengeschwindigkeit
ABS	Absorption
AlN	Aluminiumnitrid
c	Lichtgeschwindigkeit

CARS	<i>Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy</i>
CCD	<i>Charge-Coupled Device</i>
CFD	<i>Constant Fraction Discriminator</i>
CR	<i>Countrate</i> , dt. Zählrate
CW-Laser	<i>Continuous Wave</i> , dt. Dauerstrichlaser
DC	<i>Dark Count</i> , dt. Dunkelpuls. SNSPD-Pulse, die nicht durch Photonen ausgelöst werden
DE	Detektionseffizienz, kurz für IDE
DMSO	Dimethylsulfoxid
$f_{\text{rep}}$	Repetitions- bzw. Wiederholrate eines Lasers
fs-Laser	Femtosekundenlaser
FWHM	<i>Full Width at Half Maximum</i> , dt. Halbwertsbreite
G SJ	Gesamtsystemjitter
HSN	<i>Hot-Spot Nucleation</i> , dt. Entstehung eines normalleitenden Bereiches
$I(t)$	zeitlicher Intensitätsverlauf der Fluoreszenz
$I_b$	Biasstrom
$I_{c,d}$	$I_c$ ohne Beleuchtung ( $I_{c,dark}$ )
$I_{c,l}$	$I_c$ mit Beleuchtung ( $I_{c,light}$ )
$I_c$	kritischer Strom
$I_{\text{max/min}}$	maximaler Photostrom bei Positionierung
IDE	<i>Intrinsic Detection Efficiency</i> , dt. intrinsische Detektionseffizienz
IRF	<i>Instrument Response Function</i> , dt. Instrumentenantwortfunktion
$L_{\text{kin}}$	kinetische Induktivität
$m_{\text{eff}}$	effektive Masse
MFD	<i>Mode Field Diameter</i> , dt. Modenfelddurchmesser
NA	Numerische Apertur
NbN	Niobnitrid
OCE	<i>Optical Coupling Efficiency</i> , dt. optische Kopplungseffizienz
PPJ	Puls-zu-Puls-Jitter
q	Normalmode
R6g	Rhodamin 6g, Fluoreszenzfarbstoff
REM	Rasterelektronenmikroskop
s.K.	sonstige Komponenten
SDE	<i>System Detection Efficiency</i> , dt. Systemdetektionseffizienz

SERS	<i>Surface Enhanced Raman-Spectroscopy</i>
SNR	Signal-zu-Rausch Verhältnis, engl. <i>Signal-to-Noise Ratio</i>
SNSPD	<i>Superconducting Nanowire Single-Photon Detector</i> , dt. Supraleitender Einzelphotonenzähler
SRS	<i>Stimulated Raman Scattering microscopy</i>
TCSPC	<i>Time-Correlated Single-Photon Counting</i> , dt. zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung
TJ	<i>Timing-Jitter</i>
TOF	<i>Time-of-Flight</i> , Flugzeitbestimmung
VAP	Vortex-Antivortex-Paar
ZC	<i>Zero-Crossing</i>



# 1 Einleitung

Seit ihrer Entdeckung vor mehr als hundert Jahren, sind Supraleiter Gegenstand der Forschung. Ausgehend vom Material Quecksilber, konnten schon bald weitere Materialien gefunden werden, deren gemeinsame Eigenschaft der Verlust des elektrischen Widerstandes beim Abkühlen unter eine spezifische Sprungtemperatur ist. In den vierziger Jahren des 20. Jahrhunderts wurde die Supraleitung von Niobnitrid (NbN), dem Material, aus welchem die in dieser Arbeit untersuchten Detektoren bestehen, nachgewiesen. 1991 wurde erstmals ein auf NbN-Dünnschichten beruhender, schneller Detektor mit Einzelphotonenempfindlichkeit vom sichtbarem Licht bis in den Infrarotbereich von G. N. Gol'tsman und A. D. Semenov vorgestellt [1]. Ziel dieser Arbeit ist es, das Zeitaufklärungsvermögen der supraleitenden Einzelphotonenzähler (engl. *Superconducting Nanowire Single-Photon Detector*, SNSPD) zu untersuchen, dieses zu optimieren und mit ihnen einige beispielhafte Messungen von Raman-gestreutem Licht durchzuführen, um die Einsatzmöglichkeiten in der Spektroskopie aufzuzeigen.

Seit gut fünfzehn Jahren setzen sich nun einige Forschergruppen weltweit mit den SNSPD, auseinander. Hierzu wurden zunächst einige grundlegende Theorien zur Funktionsweise von SNSPD aufgestellt. Das sogenannte *Hot-Spot*-Modell [2] geht bei der Detektion von Photonen davon aus, dass deren Absorption lokal zu einer Reduktion der Cooperpaardichte führt, sodass der verwendete Biasstrom nicht mehr getragen werden kann. In der Folge entsteht ein normalleitender Bereich - der sog. *Hot-Spot* (Abschnitt 2.1.1). Nach diesem Modell müssen Photonen eine Mindestenergie aufbringen, um detektiert zu werden. Experimentell zeigt sich jedoch ein anderes Bild. Hier ist ein exponentieller Abfall der Effizienz festzustellen. Einen möglichen Erklärungsansatz lieferte das Vortex-unterstützte Modell [3], das ein Zusammenspiel zwischen der Absenkung der Energiebarriere durch Photonenabsorption und dem damit möglichen Eindringen von Flussschläuchen ins das Material beschreibt (Abschnitt 2.1.1).

Neben der Untersuchung der physikalischen Prinzipien, ist ein weiterer wichtiger Aspekt, die positiven Eigenschaften von SNSPD in Anwendungen zu überführen. Wichtige Parameter sind beispielsweise die Detektionseffizienz und der *Timing Jitter* (TJ). Daher ist ein großer Teil der Entwicklung der Optimierung der Detektoren gewidmet. So können mit SNSPD sehr hohe intrinsische Effizienzen von über 90% erzielt werden [4]. Hierzu wird der SNSPD direkt auf einen Wellenleiter integriert und dadurch die Wechselwirkungslänge zwischen Licht und supraleitendem Material deutlich vergrößert (von nur einigen nm bei senkrechter Einstrahlung zu einigen  $\mu\text{m}$ ). Die Absorption erfolgt bei diesem Aufbau über das evaneszente<sup>1</sup> Feld.

---

<sup>1</sup> Anteil der Lichtwelle, der sich außerhalb des Wellenleiters ausbreitet und dessen Intensität exponentiell abklingt

Ebenso ist der Einsatz von Kavitäten, in denen das Photon durch interne Mehrfachreflexion eine erhöhte Absorptionswahrscheinlichkeit besitzt, ein probates Mittel zur Steigerung der Effizienz [5, 6]. Beide Möglichkeiten der Effizienzsteigerung (Abschnitt 2.1.4) schränken jedoch den Wellenlängenbereich in dem der SNSPD arbeitet ein. SNSPD bieten zudem weitere Vorteile, wie beispielsweise eine sehr niedrige Anzahl von Dunkelpulsen (engl. *Dark Counts*, DC) im Betrieb (Abschnitt 2.5.3). Die kurzen Totzeiten erlauben außerdem hohe Zählraten [7–10]. Nicht zuletzt deuteten die Ergebnisse anderer Gruppen bereits vor Beginn dieser Arbeit darauf hin, dass SNSPD einen sehr geringen Eigenjitter besitzen [4, 6].

Für die Anwendung der SNSPD innerhalb und außerhalb der Laborumgebung wurden diverse Experimente im Bereich der optischen Nachrichtentechnik durchgeführt [4, 11–13]. Diese reichen von der Messung verschränkter Photonen bis hin zum eingebetteten on-chip-System zur Detektion aus Einzelphotonenquellen. In [14] wird von Tanner et al. gezeigt, dass es möglich ist, die Temperatur entlang einer Faser mit SNSPD zu messen. Hierzu wird über eine Laufzeitmessung der erhöhten Raman-Rückstreuung, welche durch lokale Temperaturänderung der Faser hervorgerufen wird, ein Temperaturprofil ermittelt. Stevens et al. führen schnelle Lebensdauermessungen mit SNSPD durch [15] und vergleichen die Ergebnisse mit denen von kommerziellen Sensoren. Die Zeitauflösungen liegen im Bereich von knapp 70 ps. In all diesen Fällen sind empfindliche und schnelle Sensoren wie SNSPD mit hoher Zeitauflösung von Vorteil. Im Falle der Temperaturmessung verbessert eine höhere Zeitauflösung beispielsweise die Ortsauflösung. Bei der Lebensdauermessung beeinflusst das Zeitauflösungsvermögen die Genauigkeit bzw. Auflösbarkeit der berechneten Lebensdauern (Abschnitt 2.5.1 und 2.3.2).

Der Inhalt dieser Arbeit besteht, neben den Grundlagen, aus zwei Themenschwerpunkten. Der erste Bereich befasst sich mit den SNSPD selbst. Es wird untersucht, welche Zeitauflösungen mit SNSPD erzielt werden können. Der SNSPD wird als Detektor in der sogenannten zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung (engl. *Time-Correlated Single-Photon Counting*, TCSPC) (Abschnitt 2.3) eingesetzt. Es wird gezeigt, dass Zeitauflösungen des Gesamtsystems von minimal 7,23 ps erreicht werden können. Der Detektoranteil beträgt in diesem Falle nur noch maximal 2,16 ps (Abschnitt 3.3.3). In Kapitel 3 werden, neben den bereits erwähnten Ergebnissen, mögliche Einflussfaktoren auf die erreichbare Zeitauflösung wie Bandbreite, kritischer Strom und kinetische Induktivität untersucht.

Der zweite Teil befasst sich mit dem praktischen Einsatz der SNSPD im Bereich der Spektroskopie bei der Detektion sowohl von reiner Raman-Streuung als auch Raman-Streuung mit überlagerter Fluoreszenz (Kapitel 4). Während bei der klassischen, integralen Messung mittels Raman-Spektrometer die Fluoreszenz als Untergrund auftritt, ist es durch zeitliche Auflösung des Signals möglich das unterschiedliche Zeitverhalten der beiden Signale auszunutzen (Abschnitt 2.5.1 und 4.1.2). Während der Streuprozess instantan erfolgt, besitzt die Fluoreszenz materialabhängige Zeitkonstanten für Aufbau und Abfall des Signals. Wird die Probe nun gepulst angeregt, wie bei TCSPC nötig, kann die Raman-Streuung zeitlich weitestgehend vom Fluoreszenzuntergrund getrennt werden. Zudem wird durch die hohe Zeitauflösung des SNSPD-Systems die indirekte Aufnahme von Raman-Spektren ermöglicht. Anstatt eines Monochromators kann die Faser selbst als dispersives Element genutzt werden

(Abschnitt 4.1.3). Dies führt durch die unterschiedlichen Laufzeiten der Raman-Banden (Abschnitt 2.4.2) dazu, dass diese das Faserende zu unterschiedlichen Zeiten erreichen. So kann ein faserdispersives Raman-Spektrometer realisiert werden.





## 2 Grundlagen

### 2.1 Eigenschaften und Funktionsweise von SNSPD

Supraleitende Einzelphotonenzähler bzw. SNSPD aus NbN sind seit ihrer Entdeckung Anfang der 1990er [1] Jahre bis heute Gegenstand der Forschung [16–18]. Die Gründe hierfür liegen auf der Hand: Sie sind nicht nur in der Lage einzelne Photonen zu detektieren, sondern sie sind ebenso sehr schnell, sodass Countraten von mehreren hundert MHz möglich werden [7, 10] und arbeiten dabei sehr rauscharm. Durch geeignetes Design können sehr hohe Effizienzen erreicht werden [4, 19, 20]. Zudem können mit ihnen Signale im Einzelphotonenregime zeitlich extrem hoch aufgelöst werden. All diese Vorzüge machen diese Detektoren zu geeigneten Kandidaten für den Einsatz in vielen Bereichen [18] wie Quantenkryptographie [12], positionsabhängige Temperaturmessung in Fasern [14], direkte All-Boden-Kommunikation [8] oder Raman-Spektroskopie [21], um nur einige Beispiele zu nennen. Dem entgegen steht eine, im Vergleich zu anderen Einzelphotonenzählern, aufwändige notwendige Kühlung auf nur wenige Kelvin. Die Kühlung kann durch die Weiterentwicklung von elektrischen Kühlsystemen, die auf der Pulsrohrtechnik basieren [22, 23], heutzutage auch rein elektrisch erfolgen. So können die SNSPD auch außerhalb des reinen Forschungsbereichs eingesetzt und ohne flüssiges Helium betrieben werden.

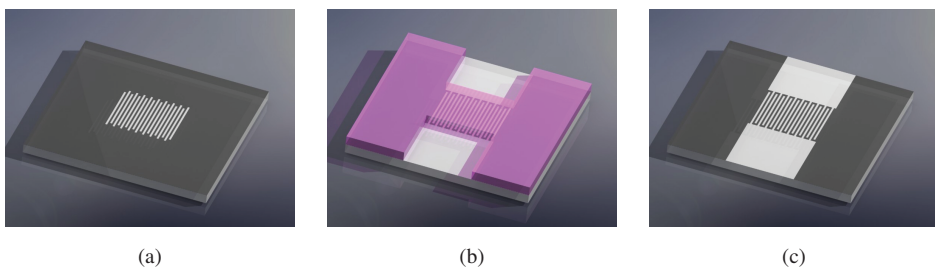


Abbildung 2.1: Modellhafte Darstellung der Detektorstrukturierung. (a) Bereits entlackte NbN-Schicht nach der Elektronenstrahlolithographie, (b) strukturierte NbN-Schicht nach dem Reaktiven Ionenätzen (c) entstandene aktive Detektorfläche nach der Lackentfernung.

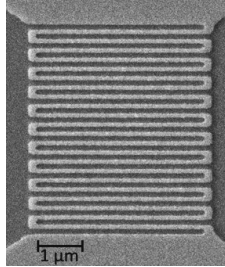


Abbildung 2.2: Elektronenstrahlmikroskopaufnahme der aktiven Detektionsfläche eines SNSPD.

Die Detektoren selbst bestehen üblicherweise aus einer wenige Nanometer dicken Niobnitridschicht (NbN). Das Standard-Herstellungsverfahren hierfür ist das Magnetron Sputtern. Hier wird auf ein Saphir Substrat, das auf 800°C erhitzt wird, mittels eines Niob Targets in einem Argon-Stickstoffplasma die NbN-Schicht abgeschieden. Die Schichtzusammensetzung wird hierbei durch die Partialdrücke der beiden Gase und der angelegten Spannung bestimmt [24]. Anschließend wird die so entstandene Schicht zum Detektor strukturiert, wobei hier Strukturbreiten von etwa 100 nm entstehen. Dargestellt ist der Strukturierungsprozess in Abbildung 2.1.

Zunächst werden die feinen Strukturen (100 nm Breite) per Elektronenstrahlithographie und *argon ion milling*<sup>1</sup> hergestellt (Abbildung 2.1a). In einem zweiten Schritt wird dann die Detektorfläche durch Reaktives Ionenätzen strukturiert (Abbildung 2.1b). Nach der Lackentfernung ist der Sensor einsatzbereit (Abbildung 2.1c). Abbildung 2.2 zeigt die Elektronenmikroskopaufnahme eines fertig strukturierten Sensors mit einer aktiven Fläche von etwa 4x4,5 μm.

### 2.1.1 Modelle zur Beschreibung des Verhaltens von SNSPD

In dieser Arbeit werden die SNSPD hauptsächlich im Bezug auf ihre hohe Zeitauflösung hin untersucht. Zum besseren Überblick sollen an dieser Stelle zunächst die Grundlagen zum Verständnis der Funktionsweise geschaffen werden. Neben rein mathematischen Ansätzen [25] zur Beschreibung des Detektorverhaltens, gibt es hauptsächlich zwei physikalisch basierte Theorien auf die an dieser Stelle näher eingegangen werden soll; das sogenannten *Hot-Spot*-Modell und das *Vortex*-unterstützte Modell. Letzteres baut auf dem *Hot-Spot*-Modell auf und ist dazu geeignet bestimmte Verhaltensweisen der SNSPD bei der Absorption von energieärmeren Photonen zu beschreiben.

---

<sup>1</sup> zu deutsch: Argon Ionen-Ätzen; sehr schonende Ätztechnik bei der gerade Kanten entstehen.

## Hot-Spot-Modell

Beim *Hot-Spot*-Modell handelt es sich um eine phänomenologische Beschreibung des Verhaltens des SNSPD bei Absorption eines Photons [2]. Es erreicht jedoch seine Grenzen, wenn die Energie eines Photons nicht mehr ausreicht, um genügend Cooper-Paare aufzubrechen, sodass sich der normalerweise *Hot-Spots* zu einem komplett normalleitenden Bereich ausbreiten kann, siehe Abbildung 2.3.

Die Detektion erfolgt folgendermaßen: Trifft ein Photon, dessen Energie  $E_{\text{ph}}$  größer ist als die der supraleitenden Bandlücke  $\Delta = 1,76k_bT$  [26], auf den SNSPD und wird absorbiert (Abbildung 2.3(a)), entstehen zunächst durch das Aufbrechen eines Cooper-Paares energiereiche Quasipartikel. Diese wiederum thermalisieren sehr schnell durch Elektron-Elektron-Wechselwirkung und erzeugen so eine Kaskade, die weitere Quasipartikel erzeugt [27]. Die Anzahl der Cooper-Paare wird lokal reduziert, wodurch ein Bereich um die Absorptionsstelle des Photons herum entsteht in dem Supraleitung unterdrückt wird – der sogenannte *Hot-Spot* (Abbildung 2.3 (b)). Betrachtet man den Leiterquerquerschnitt im Bereich der Photonenaufabsorption, so wird der Anteil des supraleitenden Bereichs kleiner. Der Suprastrom, der von dieser Fläche noch getragen werden kann, verringert sich. Gleichzeitig fließt der Strom nur noch durch diese supraleitenden Bereiche, da im *Hot-Spot* bereits Normalleitung herrscht. Da der Biasstrom sehr nah beim kritischen Strom  $I_c$  gewählt wird (üblicherweise  $I_b > 0,9 I_c$ ), reicht dieses Umleiten des Stroms durch den *Hot-Spot* aus, dass der Strom nicht mehr getragen werden. Es kommt zur Ausdehnung des *Hot-Spots* hin zu den Seiten des Streifens bis Normalleitung eintritt (Abbildung 2.3 (c)). Über dem normalleitenden Bereich fällt nun eine Spannung ab, die am Ausgang als SNSPD-Puls (Abbildung 2.4) gemessen werden kann.

Dieses erste Modell wurde weiter angepasst (sog. *refined Hot-Spot-Model*), um die experimentell ermittelten Werte für die Größe des entstehenden *Hot-Spots* mit den theoretisch berechneten in Einklang zu bringen [28–30].

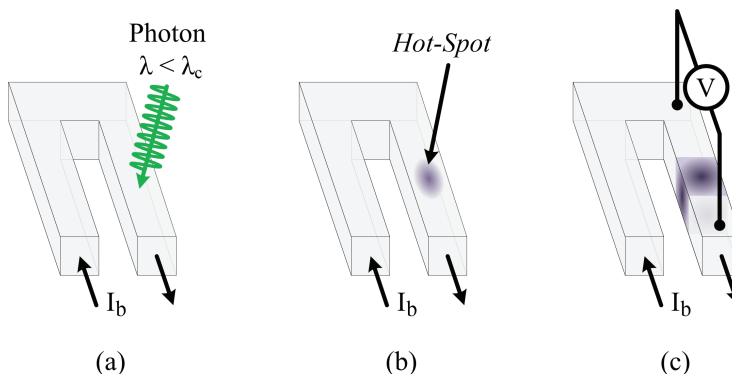


Abbildung 2.3: Darstellung der Entwicklung eines *Hot-Spots*.

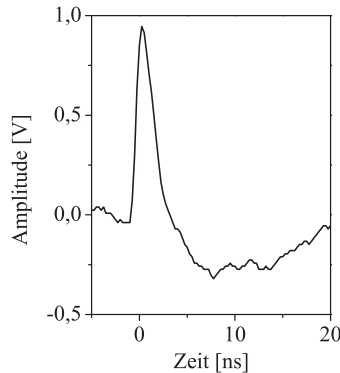


Abbildung 2.4: Darstellung eines SNSPD-Pulses nach Absorption eines Photons.

Im ursprünglichen Modell wird davon ausgegangen, dass ein *Hot-Spot* in etwa die Größe der Kohärenzlänge erreichen kann, wobei für Nb Werte im Bereich von  $< 8 - 9$  nm zu erwarten sind. Bei NbN sind diese aufgrund der Materialeigenschaften noch geringer, da NbN eine höhere Teilchenzustandsdichte sowie Diffusionskonstante besitzt. Dies müsste dazu führen, dass die Stromverdrängung nicht ausreicht, um einen normalleitenden Bereich zu erzeugen. Experimentell zeigt sich jedoch, dass eine Detektion auch in diesem Material stattfindet. Im *refined Hot-Spot-Model* wird nun angenommen, dass alle zur Verfügung stehenden Quasipartikel, die im Nicht-Gleichgewichtszustand sind, zur Entstehung des *Hot-Spots* beitragen. Diese sind nicht nur auf den direkten Absorptionsort bzw. die Kohärenzlänge selbst beschränkt, sondern es kann von einer Quasipartikelwolke ausgegangen werden. Durch Multiplikation der bereits vorhandener und durch das Photon induzierter Quasipartikel, ist eine Normalleitung über dem gesamten Streifen ebenfalls möglich [28].

Nach der Detektion kehrt der Sensor üblicherweise wieder durch Relaxation und Elektron-Phonon-Wechselwirkung mit dem Substratgitter und Kühlung in die Supraleitung zurück. Damit ist er in der Lage das nächste Photon zu detektieren.

### Vortex–unterstütztes Modell

Durch das überarbeitete *Hot-Spot-Modell* (sog. *refined Hot-Spot-Modell*) kann die Entstehung eines normalleitenden Bereiches erklärt werden, ohne einen klassischen *Hot-Spot* mit-einzubeziehen. Jedoch ist nach wie vor zu erwarten, dass ein Photon einen gewissen minimalen Energieeintrag bereitstellen muss, damit eine Detektion prinzipiell möglich ist. Diese Energie wiederum lässt sich über  $E_{\text{ph}} = h \cdot \nu$  umrechnen in eine äquivalente Wellenlänge, der sogenannten *Cut-Off-Wellenlänge*  $\lambda_c$ . Eine Detektion oberhalb von  $\lambda_c$  ist auch nach der Überarbeitung des Modells theoretisch nicht möglich. Experimentell zeigt sich jedoch, dass auch  $\lambda > \lambda_c$  Photonen detektiert werden [31, 32] [33, 65 ff.]. Es wurden unterschiedliche Lösungen und Ursachen vorgeschlagen, die eine Detektion jenseits  $\lambda_c$  erklären sollen. Eine

umfassende Erklärung stand dennoch aus. So müssten beispielsweise herstellungsbedingte Einschnürungen der Mäander, die so starken Einfluss auf die Detektion nehmen, elektronenmikroskopisch darstellbar sein [34]. Ebenso konnte gezeigt werden, dass Fluktuationen des Ordnungsparameters [35] bei 75 % liegen müssten, um solche Auswirkungen zu haben.

Von Semenov et al. wurde daraufhin das Vortex-unterstützte Modell (bzw. *Vortex-Assisted-Detection*) vorgeschlagen [3]. Es kann davon ausgegangen werden, dass es trotz der kleinen Dimensionen der SNSPD-Leiterbahnen möglich ist, dass sich Vortices im Material bilden bzw. vorhanden sein können [36]. Demnach besteht auch die Möglichkeit, dass Vortices in die NbN-Streifen eindringen können. Die Wahrscheinlichkeit steigt, wenn die den Leiter umgebende Potentialbarriere des supraleitenden Streifens durch eine Photonenabsorption lokal erniedrigt wird. Damit kann ein Vortex leichter in die Schicht eindringen. Die hierfür notwendige Energie von  $E > k_b T$  ist bereits bei Photonen im Infrarotbereich größer. Dringt ein Flusschlauch in den Leiter ein, so erhöht dies die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein normalleitender Bereich über dem ganzen Streifen ausbilden kann; eine Photonen-detektion wird möglich. Weiterhin besteht die Möglichkeit, dass ein bereits vorhandenes Vortex-Antivortex-Paar (VAP) thermisch getrennt wird. Durch die freiwerdende Bindungsenergie und der Bewegung der Vortices im Leiter durch die Lorentz-Kraft wird ebenfalls die Ausbildung eines normalleitenden Bereichs unterstützt [37, 38].

## 2.1.2 Signalentstehung und kinetische Induktivität von SNSPD

Die Signalentstehung beim SNSPD erfolgt, je nach Detektionsregime (siehe Abschnitte 2.1.1 und 2.1.1), zunächst durch das Zustandekommen eines normalleitenden Bereiches, sodass der angelegte Bias-Strom nicht mehr verlustfrei fließen kann. Dadurch fließt über einen Spannungsteiler, bestehend aus Lastwiderstand und dem sich aufbauenden Normalleitungswiderstand des SNSPD, ein Strom. Der Lastwiderstand wird üblicherweise gleich dem Leitungswiderstand bei  $R_L = 50 \text{ k}\Omega$  gewählt. Der sich dynamisch auf- und abbauende Widerstand des SNSPD erreicht maximale Werte von einigen  $\text{k}\Omega$  [39]. Am Ausgang kann demnach bei Auftreten einer Normalleitung im SNSPD ein Spannungsabfall detektiert werden, der pulsförmig verläuft. Die Anstiegszeiten bewegen sich im Bereich von etwa 100 ps [33, 127 ff.]. Durch Messung des Spannungsverlaufs und Fit der Abfallszeit  $\tau = L_{\text{kin}} / (R_L + R_n)$  [40] lässt sich  $L_{\text{kin}}$  errechnen.  $R_n$  beschreibt hierbei den entstehenden Normalleitungswiderstand des SNSPD. Für NbN ergeben sich hierbei kinetische Induktivitäten ( $L_{\text{kin}}$ ) in der Größenordnung von etwa  $1 \text{ nH}/(\mu\text{m})$  [40, 41]. Die Induktivität skaliert demnach mit der Länge des SNSPD.

## 2.1.3 Physikalische Ursachen des Detektorjitters

Neben den rein technischen Einflüssen auf den Gesamtsystemjitter (GSJ) (Abschnitt 2.3), stellt sich die Frage, welche Einflüsse detektorseitig zu einer endlichen Zeitauflösung führen

und damit zum Detektorjitter beitragen. Zunächst lässt sich feststellen, dass alle internen Transportmechanismen in einer endlichen Zeitspanne ablaufen. Dies bedeutet, dass die Absorption eines Photons in Folge zu einer Normalleitung und damit einem messbaren Widerstand führt [16]. Es handelt sich bei den Vorgängen im Allgemeinen um statistische Prozesse, sodass die Abfolge der Ereignisse (je nach zugrunde gelegter Theorie und Modell) zwar gleich abläuft, die absorbierte Energie sich bei jeder Absorption durch statistische Prozesse minimal anders verteilt wird [29]. So konnte durch ein *Pump-Probe-Experiment*<sup>2</sup> bei dem immer erzeugte Photonenpaare als Anregungs- und Abfragepuls eingesetzt wurden, eine charakteristische Relaxationszeit des SNSPD von 15 ps ermittelt werden [42].

Es kann angenommen werden, dass die internen Prozesse der Absorption, das Aufbrechen der Cooperpaare und damit die Verteilung der Energie, die Entstehung eines normalleitenden Bereiches (*Hot-Spot*), das Abführen der Energie über das gekühlte Substrat und anschließende Rückkehr in die Supraleitung jeweils über eigene Zeitkonstanten verfügen. In Ihrer Summe ergibt sich bei Absorption eines Photons aus ihnen die Gesamtrelaxationszeit für dieses Ereignis. Werden nun nacheinander mehrere Photonen absorbiert, variieren nun alle diese Zeiten. Statistisch betrachtet ergibt sich durch wiederholte Messung dieser variierenden Gesamtrelaxationszeiten eine mittlere Gesamtrelaxationsdauer.

Dazu kommen die technischen Begrenzungen, welche bei der Auslese immer auftreten können, wie beispielsweise begrenzte Bandbreiten im Auslesepfad (Abschnitt 3.3.2) und Elektronik (Abschnitt 2.3.2) .

## 2.1.4 Optische Strahlungskopplung von SNSPD

Für den Einsatz der SNSPD außerhalb des Labors ist nicht nur eine hohe Kopplungseffizienz zwischen Licht und Detektor notwendig, sondern vor allem die im gesamten System erreichte Systemdetektionseffizienz (SDE). Sie setzt sich aus unterschiedlichen Komponenten zusammen, wovon die Effizienz der optischen Kopplung (*Optical Coupling Efficiency*, OCE) nur einen Parameter darstellt. Insgesamt lässt sich die SDE wie folgt beschreiben:

$$SDE = OCE \times ABS \times IDE \tag{2.1}$$

ABS (*Absorption*) beschreibt den Anteil des Lichts, der nach der optischen Kopplung durch Absorption zur Signalerzeugung beitragen kann. Die Absorption ist wellenlängen- und schichtdickenabhängig [32]. So können für die Absorption im sichtbaren Bereich Werte von etwa 35 % bei unstrukturierten NbN-Schichten erzielt werden. Die Absorption skaliert mit der Schichtdicke. Die intrinsische Detektionseffizienz (IDE) beschreibt den Anteil

---

<sup>2</sup> Bei einem *Pump-Probe-Experiment*, zu Deutsch Anregungs-Abfrage-Experiment, wird das zu untersuchende System mit einem ersten Laserpuls zunächst in einen angeregten Zustand versetzt und durch einen zweiten, zeitverzögerten Puls ausgelesen.

Photonen, der absorbiert wird und dann zu einem Signal des Detektors führt. Die OCE ist der Anteil der Strahlung, der tatsächlich auf den Detektor trifft.

Für die optische Ankopplung des Detektors gibt es mehrere Möglichkeiten. Das Licht kann beispielsweise direkt über ein optisches Fenster auf den Detektor eingestrahlt werden. Ebenso kann man optische Fasern verwenden, um das Licht zum Detektor zu bringen. Aber auch eine direkte Kopplung zwischen Detektor und Wellenleiter ist durch Wellenleiterintegration möglich [43], siehe Abbildung 2.7.

Im Falle von direkter optischer Kopplung wird über ein Eintrittsfenster und mehrere Filterschichten auf den unterschiedlichen Temperaturstufen das Licht auf den Detektor eingestrahlt. Hierzu muss der Detektor in einer optischen Achse zum Eingangsstrahl positioniert werden, was den Einsatz eines Kryostaten voraussetzt. Im Gegensatz dazu ist es der Einsatz von Fasern vorteilhaft (Details siehe Abschnitt 2.4), da das Licht gezielt zum Sensor geleitet werden kann. Zudem kann die Einkopplung von Streulicht weitestgehend vermieden werden. Fasern können auch in einem Messstab [33] verwendet werden. Das verkürzt die nötigen Zeiten für Ein- und Ausbau erheblich.

Im Gegensatz zur flexiblen optischen Kopplung mittels einer Mikrofokus-Optik in Abbildung 2.5 bei dem in dieser Arbeit eingesetzten Kryostaten, finden sich in der Literatur effizientere Ansätze. Abbildung 2.6 zeigt zwei mögliche Beispiele. Durch den Klebprozess in Abbildung 2.6a aus [44] kann es nicht mehr zu einer Dejustage durch die Abkühlung kommen. Die rückseitige Montage ermöglicht eine Führung der Faser. Die leicht schrägen Kanten, die durch den Ätzprozess entstehen, bieten genügend Kontaktfläche für das Epoxidharz. Zudem ermöglicht die rückwärtige Montage das Aufbringen einer optischen Kavität auf dem SNSPD, was zusätzlich zu einer deutlichen Steigerung der IDE führt.



Abbildung 2.5: Blick auf Detektor und Optik bei offenem Kryostaten. Das Bild wurde mit freundlicher Genehmigung durch das Leibniz-Institut für Photonische Technologien e.V. (Sven Döring) zur Verfügung gestellt.



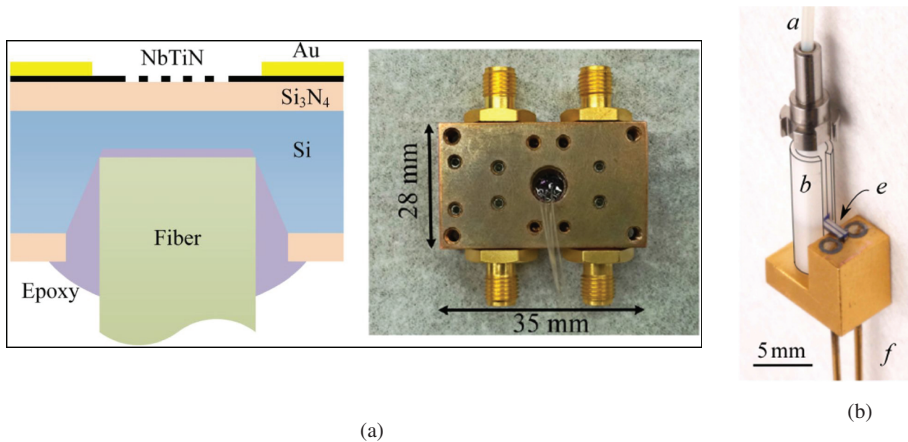


Abbildung 2.6: Beispiele zur Detektionseffizienzsteigerung aus der Literatur. (a) Links: Querschnitt durch den Detektor, Substrat und Faser mit geklebter Verbindung zwischen Faser und SNSPD. (a) Rechts: Kapselung von 4 Detektoren mit geklebter Faser, wie links schematisch dargestellt. (b) Selbstjustierende Steckverbindung zwischen Faser und Detektoreinheit durch Einsatz einer sog. *Mating Sleeve*, bezeichnet mit b in der Abbildung.

Die Selbstjustage in Abbildung 2.6b aus [45] wird erreicht durch die runde Form des Substrats als, des *Mating Sleeves*<sup>3</sup> und des Halters. So erfolgen auch die Zusammenziehungsprozesse, die beim Abkühlen des Materials auf Arbeitstemperatur entstehen, ebenso zentrisch und werden ausgeglichen. Die Bestrahlung erfolgt hier von der Detektorseite. Die Verluste durch der Kopplung werden mit weniger als 1 % angegeben, wobei die Detektorfläche  $25 \times 25 \mu\text{m}$  beträgt.

Neben den Möglichkeiten die SDE durch bessere OCE zu verbessern, ist ein weiterer Ansatz die Chance auf Absorption und damit die IDE der Sensoren zu verbessern. In der Literatur gibt es zwei Ansätze hierfür, siehe Abbildung 2.7.

Die erste Variante ist die Verwendung einer optischen Kavität, sodass ein Photon mehrfach Gelegenheit hat absorbiert zu werden. Damit einher geht allerdings eine Einschränkung der Bandbreite. Die zweite Variante ist die direkte Integration des SNSPD auf einen optischen Wellenleiter. Hiermit können die IDE auf knapp 90 % gesteigert werden [6]. Marsili et. al konnten mit einem anderen Materialsystem (WSi) sogar IDE von über 93 % nachweisen [19].

<sup>3</sup> Ein *Mating Sleeve* ist ein aus dem gleichen Material (typ. Zirkon) wie die Faserferrulen hergestelltes hergestelltes Verbindungsstück mit dem 2 Fasern ohne Versatz und damit nahezu verlustfrei miteinander verbunden werden können.



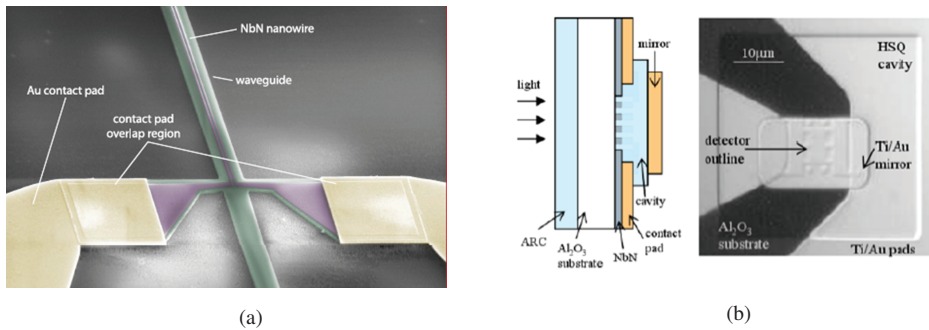


Abbildung 2.7: Möglichkeiten zur Steigerung der IDE aus der Literatur. (a) Integration eines SNSPD auf einem Wellenleiter [20], (b) SNSPD mit zusätzlicher Kavität zur [18].

## 2.2 Nationaler und internationaler Stand der Forschung

SNSPD werden seit etwa 15 Jahren erforscht und sind nach wie vor ein aktuelles Forschungsthema [46] in Bezug auf Detektorentwicklung, Systemintegration und Anwendung. National sowie international beschäftigen sich einige Gruppen mit diesem Thema. In Europa sind das zum Einen die Universität Delft mit eigener Herstellung der Chips und der Ausgründung *Single-Quantum*, die Sensoren als auch komplette Systeme basierend auf SNSPD kommerziell anbietet.

Zudem wird am Institut für Mikro- und Nanoelektronische Systeme (IMS) von Prof. Siegel am Karlsruher Institut für Technologie (KIT) an SNSPD geforscht. Hier steht die derzeit deutschlandweit einzige Technologie für magnetrongesputterte NbN-Schichten und Chipherstellung. Alle in dieser Arbeit untersuchten Schichten stammen aus der Fertigung des KIT. Zudem wurde am IPHT Jena eine neue Herstellungstechnologie auf Basis von *Atomic Layer Deposition* (ALD, dt. Atomlagenabscheidung) entwickelt. Die Vorteile dieser Technologie liegen beispielsweise in der absoluten Schichtdickenkontrolle und der Möglichkeit zukünftig auch auf 3-dimensionalen Strukturen abscheiden zu können [47, 48]. Im Herbst 2016 konnte der erste, am IPHT hergestellte, funktionierende SNSPD auf der ASC (*Applied Superconductivity Conference*) in Form eines Beitrags präsentiert werden [49]. Die Ergebnisse der ALD-SNSPD fließen jedoch nicht in diese Arbeit mit ein.

Am Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt (DLR) in Berlin wird überwiegend an den theoretischen Grundlagen der Funktionsweise von SNSPD gearbeitet [28, 50] (Prof. Hübers und Prof. Semenov). Seit kurzem gibt es auch eine neu eingerichtete Professur an der Universität Münster für dieses Themengebiet (Prof. Pernice).

Weiterhin gibt es einige Arbeiten aus den USA (Stanford und MIT), aus Schottland von Prof. Hadfield (Heriot-Watt University, Edinburgh) und aus Japan von H. Terai, wobei es hier meist

um eine Kombination aus Auslese und die Integration möglichst vieler Sensoren geht. Ebenso gibt es einige Beiträge aus China (Chinese Academy of Sciences, SIMIT). Kommerziell bietet SCONTEL (Russland) ebenfalls SNSPD-Systeme zum Kauf an. Bei SCONTEL handelt es sich um eine Ausgründung der Moscow State University um Dr. G. Goltsman.

Für die Sensorherstellung wird üblicherweise nach wie vor als Grundmaterial magnetrongesputtertes NbN auf Saphirsubstrat verwendet. Es gibt jedoch auch einige Arbeiten über SNSPD auf Siliziumsubstraten [4, 5, 44]. Mehrere Gruppen haben neue Konzepte zur Optimierung der DE vorgestellt (Abschnitt 2.1.4).

## 2.3 Zeitauflösung bei Einzelphotonenempfindlichkeit

In den vorangegangenen Abschnitten wurde erläutert, wie das Signal beim SNSPD entsteht. Im Gegensatz beispielsweise zu Bolometern, die einem Intensitätsverlauf eines zu messenden Signals direkt folgen, ist die Signalantwort des SNSPD für jedes Photon quasi identisch (siehe Abbildung 2.4). Hierdurch ergibt sich, dass die direkte Messung des zeitlichen Verlaufs durch den SNSPD alleine nur als Abfolge der Häufigkeit der erzeugten Pulse dargestellt werden kann. Der zeitliche Abstand zwischen den Detektionsereignissen liegt jedoch im Bereich einiger ns, da sowohl SNSPD als auch die Verstärker wieder im Gleichgewicht sein müssen, bevor eine erneute Detektion zuverlässig erfolgen kann.

Besteht die Messaufgabe jedoch darin, dass optische Signale im Einzelphotonenbereich mit einer deutlich höheren zeitlichen Auflösung im ps-Bereich betrachtet werden sollen, so bietet sich die Technik der sog. zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung an (*Time-Correlated Single-Photon Counting* bzw. TCSPC). Hierbei wird durch mehrfache Durchführung des Experiments eine statistische Verteilung der einzelnen Photonen innerhalb des optischen Signals ermittelt und in einem Histogramm mit extrem hoher zeitlicher Auflösung wiedergegeben. In den nachfolgenden Abschnitten soll auf die Messtechnik selbst sowie die elektronikseitigen Parameter eingegangen werden.

### 2.3.1 Funktionsprinzip der zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung

Die zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung ist die Messtechnik der Wahl, wenn sehr lichtschwache Prozesse zeitlich aufgelöst werden sollen. Sie findet heute hauptsächlich Anwendung in der Fluoreszenzspektroskopie [51] und ist als Ein- und Mehrkanalsystem [52] verfügbar. Als Detektoren kommen üblicherweise kommerzielle, auf Photoeffekt- oder Halbleiterbasis hergestellte Detektoren zum Einsatz.

Obwohl es die TCSPC-Technik bereits seit mehr als 20 Jahren gibt, ist die Kombination von SNSPD und TCSPC für den Spektroskopie-Bereich noch relativ neu [10]. Ein Experiment, welches zur Charakterisierung von Einzelphotonenquellen dienen sollte, wurde bereits 2005 von Hadfield et. al demonstriert [11]. Im Jahr 2016 konnte in einer gemeinsamen Messkampagne in Zusammenarbeit des TCSPC-Herstellers Becker & Hickl und Scontel, einem kommerziellen SNSPD-Hersteller mit Sitz in Russland, eine Zeitauflösung des Gesamtsystems (sog. *Instrument Response Function*, IRF) von 17,9 ps nachgewiesen werden [53].

Das Funktionsprinzip von TCSPC ist in Abbildung 2.8 dargestellt. Die Signalerzeugung erfolgt mit Hilfe eines gepulsten Lasers, welcher bei einer konstanten Repetitionsrate arbeitet. Mit dem Laser läuft ein Triggersignal synchron, welches auf der ersten Zeile in Abbildung 2.8a. Der Laserpuls regt üblicherweise ein Probe an, welche mit einem optischen Signal auf diese reagiert, was in der zweiten Zeile dargestellt ist. Die dritte Zeile stellt das beim SNSPD erzeugte Signal dar. Dieses wird genutzt, um bei der TCSPC-Elektronik die Zeitmessung zu starten. Beim Eintreffen des nächsten Triggers wird die Zeitmessung gestoppt und das Photon damit einem spezifischen Zeitslot zugeordnet. Durch die mehrfache Durchführung solch einer Messung und Zuordnung der registrierten Photonen in die Zeitslots entsteht nach und nach ein Histogramm (Abbildung 2.8b), das in seinem zeitlichen Verlauf das Originalsignal rekonstruiert.

Durch die gepulste Anregung wird das Signal mit jedem Anregungslaserpuls erneut erzeugt. Voraussetzung hierfür ist, dass die Bedingungen während der TCSPC-Messung identisch bleiben und das Signal selbst im Einzelphotonenbereich liegt. Das bedeutet, dass die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon registriert wird zum Zeitpunkt des Intensitätsmaximums des zu erfassenden Originalsignals deutlich wahrscheinlicher ist als beispielsweise zum Zeitpunkt des Signalanstiegs. Um die Statistik zu wahren, muss die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon registriert wird bei unter 10 % liegen, da es sonst zu sog. *Pile-up*-Effekten kommen kann, die das Histogramm verfälschen. Eine Signalrekonstruktion ist dann nicht mehr nachträglich möglich. Die Messung muss bei geeigneten Bedingungen erneut durchgeführt werden.

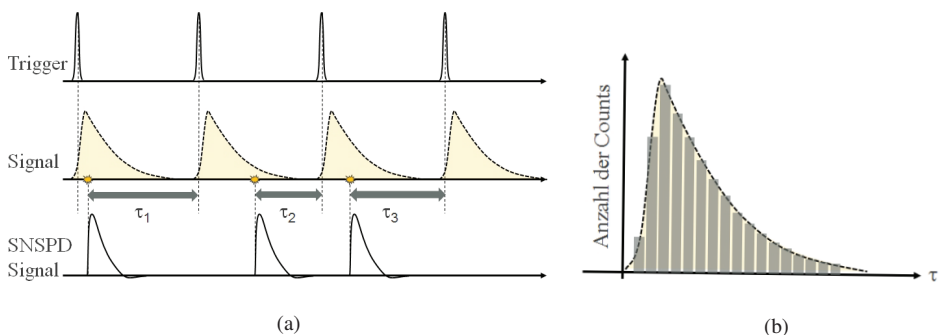


Abbildung 2.8: Funktionsprinzip einer TCSPC-Messung (a) zeitlicher Ablauf der einzelnen Signale für die Messung (b) entstehendes Histogramm.

### 2.3.2 Minimale Zeitauflösung, *Instrument Response Function* und *Timing-Jitter*

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf der Bestimmung und Optimierung der erreichbaren Zeitauflösung durch SNSPD. TCSPC wird seit vielen Jahren für die zeitliche Auflösung von Signalen im Einzelphotonenbereich verwendet [51], weshalb sie auch für die Auswertung der SNSPD Signale eingesetzt wird.

Dennoch ist auch hier die zeitliche Auflösung im Rahmen ihrer technischen Möglichkeiten begrenzt. Bei der Bestimmung des GSJ, der sogenannten Instrumentenantwortfunktion (*Instrument Response Function*, IRF), tragen alle Komponenten im Auslesepfad in Form ihres intrinsischen *Timing-Jitters* (TJ) bei. Hierzu gehören im Falle des verwendeten Messaufbaus (Details Abschnitt 3.1) folgende Komponenten:

- der Beitrag der TCSPC-Elektronik,
- der Beitrag des Detektors (abhängig von den internen Prozessen die zur Entwicklung des normalleitenden Bereichs beitragen),
- der Beitrag der verwendeten Verstärkerkette,
- der Beitrag durch Puls-zu-Puls-Jitter (PPJ) des Lasers,
- der Beitrag der Laserpulslänge
- sonstige unbekannte Komponenten (s.K.).

Die einzelnen Beiträge entstehen beispielsweise durch bauteilintrinsische Ursachen wie endlich steile Anstiegsflanken und Bandbreitenbegrenzung im Auslesepfad (Abschnitt 3.3.2). Ebenso trägt die TCSPC-Elektronik selbst mit 6,9 ps Halbwertsbreite (FWHM) zur IRF bei.

Diese Einzelkomponenten sind durch Faltung miteinander verschmolzen und führen bei den Messungen in dieser Arbeit im Allgemeinen zu einer gaußförmigen IRF. Hierbei gilt [54]:

$$y(t) = f(t) * g(t) \quad \bullet \quad Y(\omega) = F(\omega) \cdot G(\omega) \quad (2.2)$$

Im Falle der Faltung zweier Gaußfunktionen kann angesetzt werden, dass:

$$\begin{aligned} Y(\omega) = F(\omega) \cdot G(\omega) &= \exp\left(-\frac{\omega^2 \sigma_f^2}{2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{\omega^2 \sigma_g^2}{2}\right) \\ &= \exp\left(-\frac{\omega^2 (\sigma_f^2 + \sigma_g^2)}{2}\right) \end{aligned} \quad (2.3)$$

$$Y(\omega) = \exp\left(-\frac{\omega^2 \sigma_y^2}{2}\right) \cdot \text{FT}\{y(t)\} = \frac{1}{\sigma_y \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (2.4)$$

Somit ergibt sich aus Gleichungen 2.2 - 2.4:

$$\sigma_y = \sqrt{(\sigma_f^2 + \sigma_g^2)} \quad (2.5)$$

Dies bedeutet, dass die Einzelbeiträge des GSJ, welche ebenfalls einen gaussförmigen Verlauf besitzen, gemäß 2.6 addiert werden können [55].

$$\sigma_{\text{IRF}} = \sqrt{\sigma_{\text{TCSPC}}^2 + \sigma_{\text{SNSPD}}^2 + \sigma_{\text{Verstärker}}^2 + \sigma_{\text{PPJ}}^2 + \sigma_{\text{Laser}}^2 + \sigma_{\text{s.K.}}^2} \quad (2.6)$$

Der Zusammenhang zwischen Halbwertsbreite und Standardabweichung lässt eine einfache Umrechnung zu:

$$\text{FWHM}_{\text{IRF}} = 2 \cdot \sqrt{2 \ln 2} \cdot \sigma_{\text{IRF}} \approx 2,35 \cdot \sigma_{\text{IRF}} \quad (2.7)$$

Durch Gleichungen 2.6 und 2.7 ist das Zurückrechnen auf den reinen Beitrag des Detektors theoretisch möglich. Voraussetzung hierfür ist jedoch, dass der genaue zeitliche Verlauf der Einzelbeiträge bekannt ist. Zwar kann die IRF der TCSPC-Elektronik selbst nach Herstellerangaben bestimmt werden [56]. Problematisch ist jedoch die Trennung des Verstärkeranteils vom Detektorbeitrag, was in Abschnitten 3.2.1 und 3.3.2 diskutiert wird.

### 2.3.3 *Pile-up*-Effekte und Vermeidungsstrategien

TCSPC nutzt die statistische Verteilung von Photonen in einem schwachen Signal, um durch wiederholte Messung ein repräsentatives Histogramm zu erstellen. Zur Erhaltung der Statistik ist es notwendig, dass die Wahrscheinlichkeit  $P$ , dass ein Photon innerhalb eines Pulses eintrifft  $P \ll 1$  sein. Sonst ist mit sog. *Pile-up* zu rechnen [52, 244 ff.]. Generell unterscheidet man zwischen klassischem *Pile-up* und *Inter-Pulse Pile-Up*.

Als klassischen *Pile-up*-Effekt bezeichnet man den Sachverhalt, dass die Signalintensität so hoch ist, dass innerhalb einer Signalperiode oft mehr als ein Photon erzeugt wird, es aber nicht detektiert werden kann. So wird in einem bestimmten Zeitbereich ( $0.. \tau_{100\%}$ ) in solch einem Fall die Wahrscheinlichkeit  $P=1$  erreicht, dass ein Photon eintrifft. Das äußert sich in einem Signalabfall nach diesem Zeitpunkt (Abbildung 2.10), da die Messelektronik bereits ein Photon registriert hat. Photonen, die mit  $t > \tau_{100\%}$  ankommen, können nicht mehr registriert werden und gehen verloren.

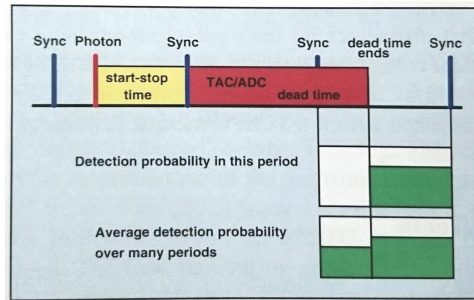


Abbildung 2.9: Mechanismus des *Inter-Pulse Pile-Ups* [52, S. 245].

Dies führt zu einem verfälschten und durch den *Pile-up*-Effekt verkürzten Signalverlauf. In der Literatur wird davon ausgegangen, dass die Grenze für das Auftreten des *Pile-up*-Effektes bei etwa 1 % der Repetitionsrate erreicht wird. Bei genauer Betrachtung zeigt sich jedoch, dass beispielsweise bei Messungen von Fluoreszenzlebensdauern oft bei deutlich höheren Countrate (CR) von etwa 20 % der Repetitionsrate gearbeitet werden kann.

Beim *Inter-Pulse Pile-Up* handelt es sich nicht um einen reinen Verlust von Photonen, sondern um einen auslesetechnischen Verlust. Dieser entsteht, wenn Verarbeitungszeit und kurze Messintervalle gleichzeitig auftreten, sprich bei Experimenten mit hohen Repetitionsraten ( $f_{\text{rep}}$ ). So kann es vorkommen, dass zu Beginn eines Messintervalls die TCSPC-Elektronik noch mit der Auswertung beschäftigt ist. Somit können nur Photonen, die nach diesem ersten Zeitbereich eintreffen registriert werden, siehe Abbildung 2.9. Dies führt, ebenso wie der klassische *Pile-up*-Effekt, zu einem Verlust von Photonen, allerdings zu Signalbeginn. Oft entsteht eine Art Stufe im Histogrammverlauf. Durch das unterschiedliche zeitliche Auftreten von klassischem *Pile-up* und *Inter-Pulse Pile-Up* kompensieren sich beide teilweise.

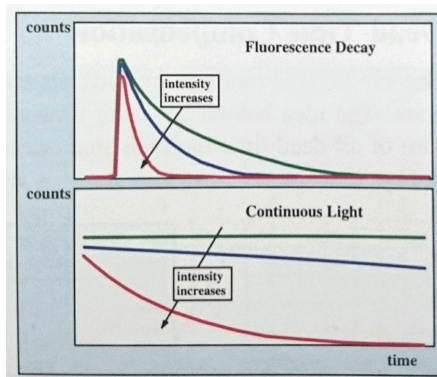


Abbildung 2.10: Einfluss des klassischen *Pile-up*-Effekts auf das Messergebnis [52, S. 244].

Die einfachste Strategie für die Vermeidung des von *Pile-up*-Effekten ist, mit ausreichend geringer CR zu arbeiten. Die Repetitionsraten bei den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten lag zwischen 70 und 80 MHz; die CR des SNSPD bei  $< 10^4 \text{ s}^{-1}$ . Damit ist die zuvor genannte Bedingung von  $\text{CR} < 1 \% f_{\text{rep}}$  erfüllt. Ebenso ist die Wahrscheinlichkeit für ein Auftreten des *Inter-Pulse Pile-Ups* reduziert.

### 2.3.4 Soft- und Hardware

Da die Wahl der richtigen Messparameter ausschlaggebend für das Erreichen hoher Zeitaufösungen ist, soll an dieser Stelle ein Überblick über die softwareseitigen Einstellmöglichkeiten gegeben werden [52].

Zu den wichtigsten Parametern, die Einfluss auf die Zeitauflösung des Systems nehmen, sind die Einstellungen für die Zeitslotbreite und maximale Messfenstergröße. Das maximal mögliche Zeitfenster beträgt  $\tau_{\text{Fenster,max}} = 50 \text{ ns}$  und wird mit  $\text{Gain} = 1$  eingestellt. Da die Messelektronik 4096 Zeitslots zur Verfügung stellt, bedeutet dies, dass die Zeitslotbreite  $\tau_{\text{Slot,max}}/4096 = \tau_{\text{Fenster,max}} = 50 \text{ ns} / 4096 = 12,2 \text{ ps}$  beträgt. Das bereitgestellte Zeitfenster berechnet sich durch  $\tau_{\text{Fenster}} = \tau_{\text{Fenster,max}} / \text{Gain}$ . Der Wert für den sogenannten *Gain* ist zwischen 1 und 15 variierbar. Dadurch ergibt sich eine minimale Fensterbreite von  $\tau_{\text{Fenster,min}} = 3, \bar{3} \text{ ns}$ . Die minimale Zeitslotbreite beträgt demnach:

$$\tau_{\text{Slot,min}} / 4096 = \tau_{\text{Fenster,min}} = 3, \bar{3} \text{ ns} / 4096 = 814 \text{ fs.}$$

Desweiteren ist es besonders wichtig den Abtastzeitpunkt so genau wie möglich festzulegen. Wie in Abbildung 2.11 dargestellt, kann es bei reiner Festlegung des Abtastzeitpunktes beim Überschreiten einer Schwelle durch Amplitudenhöhenvariationen des Pulses zu Abweichungen kommen. Der textitConstant Fraction Discriminator (CFD) mit integriertem *Zero Cross* (ZC) behebt genau diese Ungenauigkeit, sodass der Abtastzeitpunkt amplitudenhöhenunabhängig wird. Hierzu wird das Ursprungssignal auf zwei Pfade aufgeteilt. Einer der beiden wird invertiert, leicht zeitverzögert und mit einem festen Faktor multipliziert. Im Anschluss werden beide Pfade wieder aufsummiert. Es entsteht ein bipolares Signal (Abbildung 2.11b), das einen Kreuzungspunkt für Signale unterschiedlicher Signalamplituden besitzt. Die Multiplikation mit einem Faktor führt dazu, dass dieser „Nulldurchgang“ einen kleinen *Offset* erhält, je nach Pulsverlauf in positive oder negative Richtung. Dieser *offset*-behaftete „Nulldurchgang“ wird mit dem ZC-Level eingestellt und damit die Zeitauflösung minimiert.

Durch die „CFD-Parameter“ werden die Einstellungen für den Detektor (SNSPD) festgelegt. „Limit Low“, später auch als CFD-Level bezeichnet, bestimmt welche Amplitude betragsmäßig von einem Signalpuls mindestens erreicht werden muss, um bei der Histogrammbildung berücksichtigt zu werden. Alle anderen Pulse werden zurückgewiesen. Die Messelektronik selbst akzeptiert nur Pulse mit negativer Amplitude, sodass bei Bedarf Inverter eingesetzt werden müssen. Das CFD-Level dient dazu, Rauschen zu unterdrücken, sodass Störungen sich nicht direkt auf die Messung auswirken können.



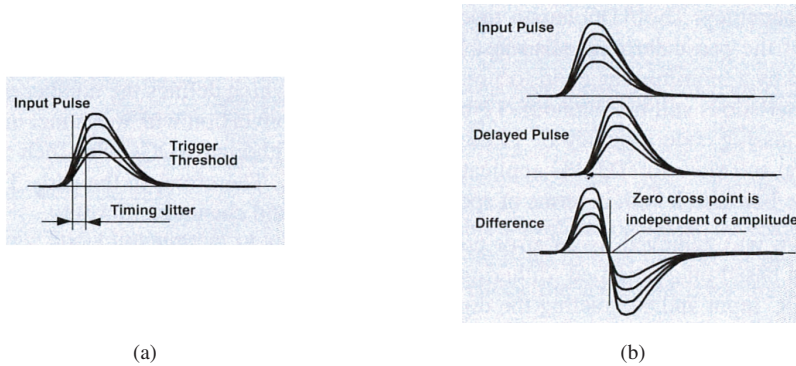


Abbildung 2.11: Schema zur Entstehung des Amplitudenjitters. (a) Amplitudeninduzierter Jitter, (b) Schema des *Constant-Fraction-Triggering* und *Zero-Cross-Punkt*. Beide Abbildungen wurden aus [52, S. 97] entnommen.

## 2.4 Optische Fasern und ihre Eigenschaften

Wie bereits die Beispiele der optischen Strahlungskopplung von SNSPD in Abschnitt 2.1.4 zeigen, sind optische Fasern das Mittel der Wahl, um Licht effizient zum Detektor zu bringen. Da auch das in dieser Arbeit verwendete Messsystem auf Fasern setzt, sollen an dieser Stelle einige grundlegende Eigenschaften erläutert werden.

Lichtwellenleiter in Form von optischen Fasern werden heute in weiten Bereichen der optischen Kommunikationstechnik als Übertragungsmedium eingesetzt [57]. Der Grund hierfür liegt sowohl in der Verfügbarkeit von leistungsstarken Lasersystemen für die Signalerzeugung, als auch an den hervorragenden Materialeigenschaften der Fasern. Aufgrund ihrer geringen Dämpfung in den Absorptionsminima kann die Strahlung sehr effizient über weite Strecken übertragen werden (Abbildung 2.12).

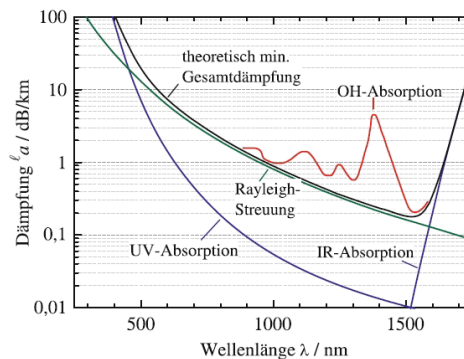


Abbildung 2.12: Dämpfung in Glasfasern [58, S. 99].



Aber auch in anderen Bereichen finden Fasern heute bereits Anwendung. So können diese beispielsweise in der Spektroskopie eingesetzt werden, um das Licht effektiv zu sammeln. Mittlerweile bieten viele Hersteller direkt faserggekoppelte Spektrometer an [59–61]. Oftmals werden hier als Option für die Spektrometer Raman-Sonden angeboten, die gleichzeitig als Anregungsquelle und Sammelement konzipiert sind.

## 2.4.1 Fasertypen

Optische Fasern bestehen bis heute üblicherweise aus Quarzglas (*fused silica*) [62], obwohl mittlerweile auch Polymere zum Einsatz kommen. Sie besitzen einen Kern aus höher brechendem Material (*core*) und ein umgebendes Mantelmaterial (*cladding*). Je nach Ausführung des Kerns lassen sie sich zunächst in zwei Kategorien einteilen: Singlemode- und Multimode-Fasern. Eine Übersicht ist in Abbildung 2.13 gezeigt.

Singlemode-Fasern besitzen einen sehr geringen Kerndurchmesser von nur wenigen Mikrometern, sodass für den angegebenen Wellenlängenbereich nur die Grundmode geführt werden kann. Multimode-Fasern führen dagegen, je nach Kerndurchmesser (typ. 50-500  $\mu\text{m}$ ), viele tausend Moden gleichzeitig. Gradientenindex-Fasern gehören ebenfalls zu den Multimode-Fasern, besitzen jedoch einen parabolischen Brechzahlverlauf.

Ein wichtiger Faktor für das Sammelverhalten von Licht ist der sogenannte Akzeptanzwinkel  $\Theta_{\text{max}}$  (Abbildung 2.14) bzw. die zugehörige numerische Apertur NA. Sie berechnen sich, je nach Verhältnis der Brechzahlen von Kern ( $n_K$ ) und Mantel ( $n_M$ ) durch:

$$\Theta_c = \arcsin\left(\frac{n_M}{n_K}\right) \quad (2.8)$$

Typ	Zeichnung	Radiales Brechungsindexprofil	Strahlausbreitung
Multimode Stufenindex Faser			
Gradientenindex Faser			
Singlemode Faser			

Abbildung 2.13: Verschiedene Fasertypen in der Übersicht. Zeichnung wurde aus [63, S. 49] übernommen und die Beschriftung auf Deutsch geändert.

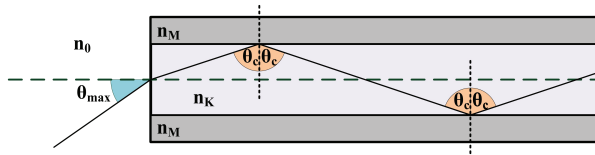


Abbildung 2.14: Darstellung zur Bestimmung des maximalen Akzeptanzwinkels  $\Theta_{\max}$  der Faser, Schema nach [64, S. 409].

$$\Theta_{\max} = \arcsin \left( \Theta_{\max} \sqrt{n_K^2 - n_M^2} \right) \quad (2.9)$$

Wobei beim Übergang zu Luft  $n_0 = 1$  gesetzt werden kann, sodass sich NA gemäß Gleichung 2.8 und 2.10 ergibt [57]:

$$NA = \sin \Theta_{\max} = \sqrt{n_K^2 - n_M^2} \quad (2.10)$$

Die hieraus resultierenden Eigenschaften werden nachfolgend kurz den Fasertypen zugeordnet und zusammengefasst

### Singlemode-Faser

Sie zeichnen sich durch einen besonders kleinen Kerndurchmesser aus, sodass nur die Grundmode geführt werden kann. Der Brechzahlverlauf ist stufenförmig; die Anforderungen an die Einkopplung jedoch am Höchsten, da  $\Theta_{\max}$  bei  $\approx 7^\circ$  ( $NA \approx 0,1$ ) liegt. Bei diesem Fasertyp tritt keinerlei Modendispersion auf. Die chromatische Dispersion ist hier der maßgebliche Dispersionsmechanismus.

### Multimode-Faser

Sie besitzen einen deutlich größeren Kerndurchmesser von typischerweise  $100 \mu\text{m}$  und mehr. Der Brechzahlverlauf ist hier ebenfalls stufenförmig ausgeführt. Innerhalb der Faser können sich viele Moden gleichzeitig ausbreiten. Dies hat zur Folge, dass es nicht ein Intensitätsmaximum gibt, sondern eine zufällige Intensitätsverteilung entsteht. Es tritt sowohl chromatische als auch Modendispersion auf, was zum Auseinanderlaufen zeitlich kurzer Pulse führt.  $\Theta_{\max}$  ist deutlich größer;  $NA = 0,2 - 0,3$ . Dadurch wird das Sammeln von Licht deutlich vereinfacht.

## Gradientenindex-Faser

Sie stellen einen Spezialfall der Mehrmodenfaser dar. Der Kerndurchmesser liegt üblicherweise bei etwa  $50\ \mu\text{m}$  wobei die Brechzahlveränderung parabelförmig bzw. sinusförmig verläuft. Dies führt zu verändertem Verhalten bezüglich der Laufzeiten der unterschiedlichen Moden in der Faser. Durch die Kurvenform des Brechzahlverlaufes und Auswahl der Materialien, kann die Modendispersion soweit angepasst werden, dass bei einer bestimmten Wellenlänge Nulldispersion herrscht. Dementsprechend ist der Einfluss der Modendispersion deutlich geringer als bei Stufenindex-Multimode-Fasern. NA liegt in etwa bei 0,2 und damit im unteren Bereich für eine Multimode-Faser. Sie stellt durch ihre Eigenschaften einen guten Mittelweg zwischen Single- und Multimode-Faser dar.

## 2.4.2 Dispersionseffekte und ihre Ursachen

Mit Dispersion wird im Allgemeinen die Abhängigkeit einer physikalischen Größe von der Frequenz einer Welle bezeichnet. Im Falle von optischen Fasern kann man hierbei verschiedene Dispersionsarten unterscheiden: Es gibt beispielsweise die Materialdispersion sowie die Wellenleiterdispersion, die bei allen Faserarten auftreten. Letztere muss vor allem bei Singlemode-Fasern beachtet werden. Ebenso treten in Singlemode-Fasern chromatische Dispersion und Polarisationsmodendispersion auf. In Multimode-Fasern wird hingegen vor allem die intermodale Dispersion beobachtet [65, 66].

### Materialdispersion

Sie wird durch die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex  $n$  verursacht, sodass auch die Ausbreitungsgeschwindigkeit in der Faser von der Wellenlänge abhängt [67]:

$$n = n(\lambda); v(\lambda) = \frac{c}{n(\lambda)} \quad (2.11)$$

Da jedes Signal, das in einer Faser geführt wird, eine endliche spektrale Breite besitzt, führt dies durch die Laufzeitunterschiede der unterschiedlichen Wellenlängen zu einer Impulsverbreiterung.

### Dispersion in Singlemode-Fasern

**Wellenleiterdispersion:** Die Materialdispersion spielt überwiegend bei Singlemode-Fasern eine Rolle, da hier ein verhältnismäßig großer Teil der Energie auch im Mantelmaterial, welches einen anderen Brechungsindex besitzt, geführt wird. Dadurch erfahren

die Anteile der Welle, die im Mantel oder im Kern laufen, unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten. Zudem ergibt sich, je nach Wellenlänge, ein unterschiedlich großer Modenfelddurchmesser (*Mode Field Diameter*, MFD) von  $MFD = \frac{2\lambda}{\pi NA_{\text{eff}}}$ , wobei  $\lambda$  die Wellenlänge und  $NA \cdot e^2 \cdot \Theta_{\text{max}}$  die effektive NA beschreibt [68, S. 17]), was von vorn herein bei gleichbleibendem Kerndurchmesser zu unterschiedlichen Anteilen der Welle im Mantel- und Kern führt. Es ist ersichtlich, dass kleine Modifikationen des Brechzahlprofils hier zu großen Änderungen führen können, sodass sich unterschiedliche Singlemode-Fasertypen realisieren lassen [66].

**Chromatische Dispersion:** Sie beschreibt die Kombination aus Materialdispersion und Wellenleiterdispersion. Beide Effekte können sich gegenseitig auslöschen, sodass die chromatische Dispersion vernachlässigt werden kann, obwohl Material- und Wellenleiterdispersion auftreten. Im Gegensatz zu Materialdispersion und Wellenleiterdispersion ist die chromatische Dispersion insgesamt als Impulsverbreiterung messbar und damit ein wichtiger Parameter für Dispersion in Singlemode-Fasern [65].

**Polarisationsmodendispersion:** Sie ist ein sehr kleiner statistischer Effekt, der meist erst bei hohen Datenraten (ab 10 Gbit/s) eine Rolle spielt. Sie beschreibt durch intrinsische (herstellungsbedingte) und extrinsische Effekte (bspw. Biegung) bedingte Laufzeitunterschiede der beiden orthogonalen Polarisationen der in der Singlemode-Faser transportierten Grundmode.

## Dispersion in Multimode-Fasern

**Intermodale Dispersion:** Sie tritt aufgrund des größeren Kerndurchmessers und der hohen Anzahl der geführten Moden nur in Multimode-Fasern auf. Die Ursache hierfür ist die durch unterschiedliche Wegstrecken in der Faser verursachten Laufzeitunterschiede einzelner Moden. Unter der Annahme einer Ausbreitung des Lichts in Form einzelner Strahlen zeigt sich, dass der Weg eines Photons, das sich entlang der optischen Achse einer Multimode-Faser bewegt deutlich kürzer ist als eines, das bei maximal erlaubtem Winkel  $\Theta_c$  auf die Grenzflächen zwischen Mantel und Kern trifft (Abbildung 2.14). Dies führt zu einem zeitlichen Auseinanderlaufen der unterschiedlichen Moden. Eine starke Verringerung der intermodalen Dispersion kann bei Wahl eines parabelförmigen Brechzahlprofils, wie bei Gradientenindex-Fasern verwendet, erreicht werden [57, 65, 66].

### 2.4.3 Laufzeit von Licht in Fasern

Mit den Kenntnissen der Dispersionseigenschaften optischer Fasern lassen sich die Transitzeit<sup>4</sup>  $\tau$  eines Pulses durch die Gruppengeschwindigkeit  $v_g$ , mit der sich die Photonen als Paket durch das Kernmaterial der Faser bewegen, mit Gleichung 2.12 beschreiben.

$$\tau = \frac{L}{v_g} \quad (2.12)$$

$L$  stellt die Länge der Faser dar. Die wellenlängenabhängige bzw. chromatische Dispersion der Faser wird weithin auch als Materialdispersion bezeichnet und wird durch die Variation der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  mit der Wellenlänge bestimmt.

$$v_g(\lambda) = \frac{c}{n(\lambda)} \cdot \left( 1 + \frac{1}{n(\lambda)} \cdot \frac{\partial n(\lambda)}{\partial \lambda} \right) \quad (2.13)$$

$c$  und  $\lambda$  sind die Geschwindigkeit des Lichts im Vakuum und Wellenlänge,  $n(\lambda)$  beschreibt den wellenlängenabhängigen Brechungsindex. Zur Berechnung von  $n(\lambda)$  wird die Sellmeier Gleichung verwendet [67, 69].

$$n^2(\lambda) = \sum_{i=1}^3 \frac{a_i \lambda^2}{\lambda^2 - b_i^2} \quad (2.14)$$

Sie erlaubt eine empirische Berechnung des materialspezifischen, wellenlängenabhängigen Brechungsindex. Die Daten der Sellmeierkoeffizienten zur Berechnung der Laufzeiten wurden aus [67] von Butov et al. entnommen. So kann mit der Länge der Faser die Laufzeit unter Anwendung von Gleichungen 2.12, 2.13 und 2.14 bestimmt werden. Umgekehrt ist es aber auch möglich bei bekannten Faserparametern die benötigte Faserlänge für eine gewünschte spektrale Auffächerung eines bestimmten Wellenlängenbereichs zu bestimmen. Nähere Informationen hierfür finden sich in Abschnitt 4.1.3.

## 2.5 Fluoreszenz- und Ramanspektroskopie

Raman- und Fluoreszenz-Spektroskopie sind zwei Methoden, um unterschiedlichste Materialien spektroskopisch zu untersuchen. Die Methoden beruhen auf unterschiedlichen Prinzipien. Während bei der Fluoreszenzspektroskopie ein anregendes Photon absorbiert wird, handelt es sich bei der Raman-Spektroskopie um einen Streueffekt bei dem der Energieaustausch über

<sup>4</sup> Die Transitzeit beschreibt die Zeit, die ein Photon oder Puls benötigt, um eine Faser der Länge  $L$  zu durchlaufen.

Stoßprozesse instantan erfolgt. Hierdurch ergibt sich zeitlich ein völlig unterschiedliches Verhalten.

## 2.5.1 Grundlagen der Fluoreszenzlebensdauer-Spektroskopie

Bei der Fluoreszenzlebensdauer-Spektroskopie, oder kurz auch Fluoreszenzspektroskopie, wird Licht aus einer Anregungsquelle absorbiert und bringt das Molekül in einen höheren, angeregten Zustand (Abbildung 2.15a). Nach Durchlaufen stufenweiser, strahlungsloser Relaxationsprozesse wird das geringste vibronische Unterniveau erreicht, in der das Molekül verharrt. Sind umgebende Moleküle nicht in der Lage die nach wie vor überschüssige Energie aufzunehmen, so relaxiert das angeregte Molekül nach einer gewissen Zeitdauer in den Grundzustand unter Aussenden eines energieärmeren Photons. Der Übergang erfolgt hierbei vertikal (Frank-Condon-Prinzip) [70]. Das Fluoreszenzspektrum besitzt die vibronische Strukturcharakteristik des niedrigeren elektronischen Zustands; es ergibt sich ein Spiegelbild der Absorption Abbildung 2.15b.

Die Zeit, die das Molekül durchschnittlich im angeregten Zustand verbleibt, wird durch die sogenannte Fluoreszenzlebensdauer ( $\tau_L$ ) ausgedrückt, welche in der Fluoreszenzspektroskopie ermittelt wird [51]. Der Intensitätsverlauf der Fluoreszenz-Lebensdauermessung (Abbildung 2.15c) folgt  $I(t) = I_0 \exp(-\frac{t}{\tau})$ .  $\tau_L$  kann daher durch eine exponentielle Kurvenanpassung ermittelt werden. Hierzu wird die Zeit bestimmt, die nach Erreichen eines Intensitätsmaximums benötigt wird, um auf etwa 37 % ( bzw. 1/e-Intensität) zu fallen.

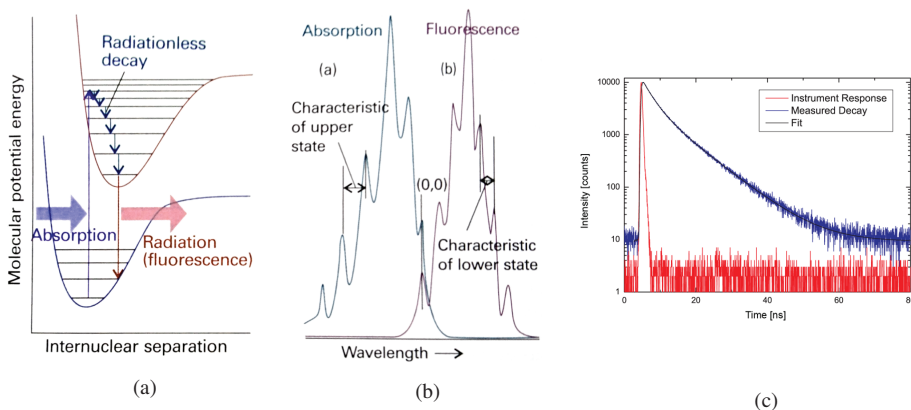


Abbildung 2.15: (a) Schematische Darstellung der Absorptions- und Emissionsübergänge bei Fluoreszenzanregung [70] (b) Schema von Absorptions- und Emissionsspektrum [70] (c) Beispielhafter Verlauf einer Lebensdauermessung von L-Tryptophan in Wasser [71].

Die Zeitskalen von  $\tau_L$  bewegen sich bei der Fluoreszenz im Bereich von einigen ns; bei Phosphoreszenz hingegen betragen diese üblicherweise Sekunden, können aber bis hin zu Stunden reichen.

## 2.5.2 Grundlagen der Raman-Spektroskopie

Im Gegensatz zur Fluoreszenzspektroskopie handelt es sich bei der Raman-Streuung um einen Stoßprozess, der instantan erfolgt. Seit dem ersten physikalischen Nachweis der Raman-Streuung in den 20er Jahren des letzten Jahrhunderts durch Sir Chandrasekhara Venkata Raman, hat sich die Raman-Spektroskopie stark weiter entwickelt. Für seine bahnbrechende Entdeckung erhielt C.V. Raman bereits 1930 den Nobelpreis. Bereits in seiner ersten Veröffentlichung hatte er darauf hingewiesen, dass die gemessenen Raman-Linien, die verschoben zur Wellenlänge der Anregung auftreten, Aufschluss über die Eigenschaften der Streusubstanz geben könnten [72].

Die Vorteile der Raman-Spektroskopie liegen vor allem in der zerstörungsfreien Untersuchung von Proben in allen Aggregatzuständen. Ebenso ist die Untersuchung von wasserhaltigen Proben möglich, ohne dass eine aufwändige Präparation im Vorfeld erfolgen muss. Weiterhin können verschiedene Umgebungsbedingungen wie Temperatur, Druck und Konzentration der Proben verändert und die damit verbundenen Abhängigkeiten von diesen Bedingungen untersucht werden [73]. Im Bereich der Lebenswissenschaften konnte in [74] gezeigt werden, dass es mittels Raman-Spektroskopie prinzipiell möglich ist einzelne Spezies von Bakterien zu unterscheiden. Ebenso ist durch den Einsatz spezieller Spektrometer möglich, die Raman-Spektroskopie auch bei Echtzeitanwendungen für die In-vivo-Diagnostik einzusetzen [75].

Durch die Vibrations-Raman-Spektroskopie auf Struktureigenschaften von Molekülen geschlossen werden. Hierzu gibt es prinzipiell unterschiedliche Ansätze wie sich die Schwingungszustände beschreiben und die damit einhergehenden Streuprozesse, welche die Grundlage der Raman-Spektroskopie sind, herleiten lassen. Von besonderem Interesse sind hier die sogenannten Normalmoden bei welchen Moleküle sinusförmig mit gleicher Frequenz und Phase schwingen. Diese Schwingungszustände kann man sich in einem sehr einfachen Fall, wie einem zweiatomigen Molekül, als Federverbindung zwischen den beiden Atomen vorstellen. Die Schwingungsfrequenz  $\omega_q$  der Normalmode  $q$  hängt von der effektiven Masse  $m_{\text{eff}}$  und der Federkonstante  $k$  ab. Gemäß der Quantentheorie ist die Vibrationsenergie quantisiert; die Schwingungsenergie  $E_{vq}$  der Normalmode  $q$  lässt sich durch einen harmonischen Oszillator beschreiben. Neben quantenmechanischen Ansätzen zur Beschreibung der Raman-Streuung [76, 77] gibt es auch vereinfachte, klassische Ansätze zur Beschreibung [78, 79].

Voraussetzung für Raman-Streuung ist, dass sich die Polarisierbarkeit des Gesamtmoleküls während der Schwingung verändert. Mit anderen Worten, wenn ein Dipolmoment  $\mu$  durch Wechselwirkung mit einem zeitabhängigen elektrischen Feld  $E = E_0 \cdot \cos(\omega_0 t)$  induziert wird. Die Polarisierbarkeit  $\alpha$  wird hierbei durch Gleichung 2.15 beschrieben [80].

$$\mu = \alpha E \quad (2.15)$$

Um die Abhängigkeit der Polarisierbarkeit von den Kernkoordinaten  $q$  (Normalmoden) zu beschreiben, kann die Polarisierbarkeit in eine Taylorreihe entwickelt werden. Diese Erweiterung gilt nur für kleine Abweichungen vom Gleichgewichtszustand  $q=0$ :

$$\alpha = \alpha(q) = \alpha_0 + \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_{q=0} \cdot q + \dots \quad (2.16)$$

Damit ist die Polarisierbarkeit abhängig von der Kernkoordinate  $q$  und oszilliert mit der charakteristischen Frequenz  $\omega_q$  um  $q = 0$ :

$$q = q_0 \cdot \cos(\omega_q t) \quad (2.17)$$

Setzt man Gleichung 2.17 und 2.16 zusammen mit dem elektrischen Feld  $E = E_0 \cdot \cos(\omega_0 t)$  in Gleichung 2.15 ein, so erhält man bei Abbrechen der Taylor-Serie nach dem ersten Term:

$$\begin{aligned} \mu(t) &= \alpha_0 \cdot E_0 \cdot \cos(\omega_0 t) \\ &+ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_{q=0} \cdot q_0 \cdot E_0 \cdot \cos[(\omega_0 - \omega_q) t] \\ &+ \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_{q=0} \cdot q_0 \cdot E_0 \cdot \cos[(\omega_0 + \omega_q) t] \end{aligned} \quad (2.18)$$

Mit Gleichung 2.18 lässt sich bereits der grundlegende Kern der Raman-Streuung als Spezialfall der allgemeinen Lichtstreuung verstehen. Der Abbruch nach dem ersten Term der Taylor Serie führt zur sogenannten linearen Raman-Streuung. Aus Gleichung 2.18 ist ebenfalls ersichtlich, dass die induzierten Dipolmomente zusätzlich als Quelle für die Abgabe einer frequenzverschobenen Strahlung sorgen. Insgesamt ergeben sich für die Streuung drei charakteristische Frequenzen:

1. Der erste Term, der mit der Frequenz der einfallenden Strahlung oszilliert, wird als klassische Lichtstreuung bzw. Rayleigh-Streuung bezeichnet.
2. Der zweite Term wird bestimmt durch die Differenz zwischen der Frequenz  $\omega_0$  des eingestrahlten elektrischen Feldes und der charakteristischen Schwingung der molekularen Normalmode  $\omega_q$ . Dieser Term beschreibt demnach die inelastische, im Vergleich zur eingestrahlten Strahlung rotverschobene Streuung, welche auch als Stokes-Streuung bezeichnet wird. Dieser Term enthält Informationen über die molekulare Struktur des Systems.



3. Der dritte Term beschreibt eine Oszillation mit der charakteristischen Frequenz  $\omega_0 + \omega_q$ . Die Abstrahlung ist daher höherenergetisch. Dieser blauverschobene Anteil der Streuung wird auch als anti-Stokes bezeichnet.

Grafisch lässt sich dies wie in Abbildung 2.16 gezeigt darstellen.

Im Gegensatz zur Fluoreszenzspektroskopie kommt es hierbei nicht zu einer Absorption des Photons und damit der Anregung in einen höheren Energiezustand. Vielmehr erfolgt ein direkter Energieaustausch bei drei charakteristischen Frequenzen. Dieser Austausch findet über sogenannte virtuelle Zustände instantan statt.

Berücksichtigt man, dass der Ursprung des Streuprozesses die zeitabhängig induzierten Dipolmomente sind, die mit der Stokes-Frequenz oszillieren, so lässt sich die Intensität des Raman-Signals ausdrücken als:

$$I_{\text{Stokes}} \propto N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial q} \right)_{q=0}^2 (\omega_0 - \omega_q)^4 E_0^2, \quad (2.19)$$

Hierbei beschreibt  $N$  die Volumendichte der Streumoleküle. Je nach Bindungstyp lassen sich so charakteristische Banden bei bestimmten Wellenzahlen (Abschnitt 2.5.2) detektieren und Rückschlüsse auf den Gesamtaufbau der untersuchten Materialien ziehen. In [80] findet sich eine Übersicht über den Zusammenhang zwischen Wellenzahl und chemischer Bindung. Für nähere Informationen sei auf entsprechende weiterführende Literatur verwiesen: [70, 78, 81, 82].

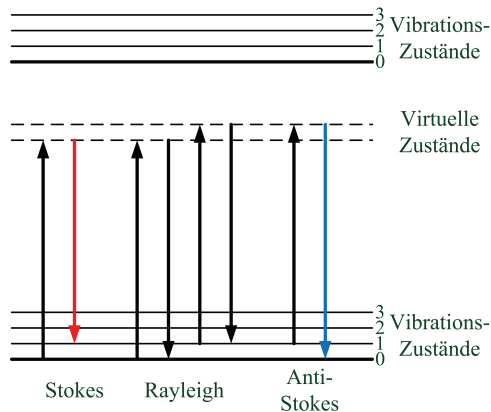


Abbildung 2.16: Schematische Darstellung von Rayleigh- und Raman-Streuung. Die Interaktion des Photons mit dem Molekül führt nicht zur Anregung eines höherenergetischen elektronischen Niveaus. Der Energieaustausch erfolgt instantan nur über sogenannte virtuelle Zustände.

## Von der Wellenlänge zur Wellenzahl

In der Spektroskopie hat sich aus Gründen der Vergleichbarkeit von Ergebnissen die Darstellung der Spektren über der sogenannten Wellenzahl eingebürgert. Hierbei wird die Wellenlänge durch eine Umrechnung in die Wellenzahl überführt. So ist die Auswertung der Spektren unabhängig vom Experiment bzw. der Anregungswellenlänge möglich.

Die Wellenzahl berechnet sich als relative Größe in Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge gemäß [83]

$$\Delta\omega = \left( \frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \cdot 10^7 \frac{nm}{cm}, \quad (2.20)$$

wobei  $\Delta\omega$  die Wellenzahl,  $\lambda_0$  die Anregungswellenlänge und  $\lambda_1$  die spektrale Wellenlänge (Angabe jeweils in nm), die betrachtet werden soll, darstellen. So wird sichergestellt, dass beispielsweise ein charakteristischer Peak immer bei der gleichen Wellenzahl zu finden ist. Die Wellenzahl  $\Delta\omega$  wird in  $\text{cm}^{-1}$  gegeben.

## Instrumentation in der Raman-Spektroskopie

Zunächst muss angemerkt werden, dass nicht von der Raman-Spektroskopie im Allgemeinen gesprochen werden kann. Es gibt unzählige verschiedene technische Aufbauten, die je nach Experiment bzw. Fragestellung angepasst werden. So kann beispielsweise der lineare Effekt der Raman-Streuung, wie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, als Messgrundlage verwendet werden. Daneben gibt es aber auch die CARS-Spektroskopie (*Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy*), die auf nichtlineare Verstärkung der Raman-Streuung setzt [80, 84]. Durch die kohärente Anregung können deutlich höhere Raman-Intensitäten erzielt werden. Daneben existieren eine Vielzahl weiterer Techniken wie beispielsweise SERS (*Surface Enhanced Raman-Spectroscopy*) oder SRS-Mikroskopie (*Stimulated Raman Scattering microscopy*) [80]. Aus diesem Grunde sollen an dieser Stelle nur die technischen Voraussetzungen für die lineare Raman-Spektroskopie (spontante Raman-Spektroskopie) erläutert werden, da diese in Kapitel 4 auch eingesetzt wird.

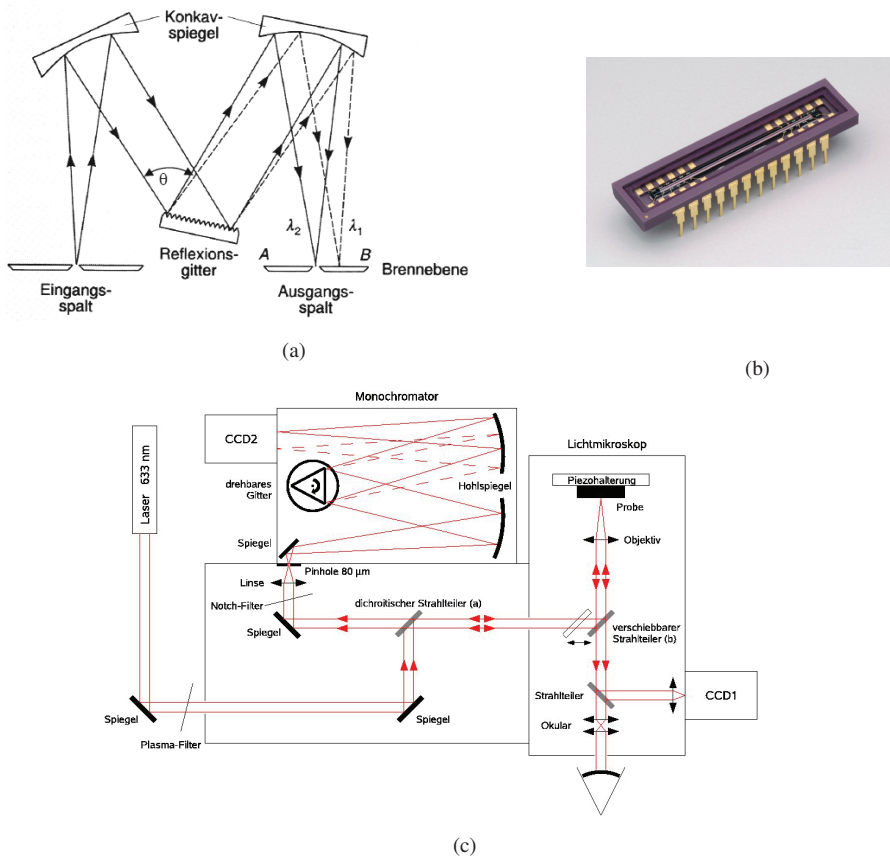


Abbildung 2.17: (a) Schematische Darstellung eines Czerny-Turner-Monochromators [87], (b) CCD-Zeilensensor (Hamamtsu) [88], (c) Schema eines konfokalen Raman-Spektrometer-Aufbaus [89].

Die Vorteile der markerfreien<sup>5</sup> Untersuchung [85] von biologischen Proben mittels Raman-Spektroskopie im Gegensatz zu anderen Methoden, liegen auf der Hand und wurden bereits erläutert. Grundsätzliche Bestandteile eines linearen Raman-Messaufbaus sind (Abbildung 2.17) [86]:

1. Anregungsquelle: hier kommen heutzutage meist Laser zum Einsatz
2. Optische Sammelelemente für das Streulicht: üblicherweise ein Mikroskopaufbau in den die Probe mit der Anregungsquelle bestrahlt werden kann und gleichzeitig das gestreute Licht wieder gesammelt wird.

<sup>5</sup> Markerfrei bedeutet in diesem Zusammenhang, dass eine Vorbehandlung von Untersuchungsmaterial nicht notwendig ist und sogar lebendes Gewebe direkt zerstörungsfrei untersucht werden kann.

3. Wellenlängenseparation: erfolgt durch einen Monochromator, wobei es hier je nach Typ unterschiedlichste technische Umsetzungen gibt. Einer der gebräuchlichsten Varianten ist ein sogenannter Gittermonochromator [87] nach dem Czerny-Turner-Prinzip (Abbildung 2.17a). Die Wellenlängenaufspaltung (Auflösung) beruht hier auf der Beugung am optischen Gitter und hängt von der Liniendichte/mm ab.
4. Detektor: hier ist ein breites Spektrum an Sensoren möglich. Meist werden jedoch Zeilenkameras, basierend auf CCD-Technik (*Charge-Coupled Device*), eingesetzt. Abbildung 2.17b zeigt einen solchen Zeilensensor von Hamamatsu [88].

Meist sind Monochromator und Detektor als Einheit verbaut zu einem Spektrometer bei dem man, je nach Hersteller (bspw. Horiba, Witec), verschiedene Ausstattungsvarianten wählen kann. Ein schematischer Aufbau eines solchen konfokalen Raman-Spektrometers ist in Abbildung 2.17c dargestellt [89].

### 2.5.3 Resultierende Anforderungen an Detektoren

Beim Anforderungsprofil an die eingesetzten Detektoren muss zwischen den hier vorgestellten Anwendungsmöglichkeiten unterschieden werden. Während bei der Messung der Fluoreszenz noch relativ hohe Intensitäten erreicht werden können, ist die Raman-Streuung ein relativ unwahrscheinlicher Prozess, der verhältnismäßig selten auftritt. Bei der Verwendung der TCSPC-Messtechnik für die Fluoreszenzlebensdauermessung muss jedoch sichergestellt werden, dass die Statistik stimmt und Pile-up (Abschnitt 2.3.3) vermieden werden kann. Daher ist das Signal soweit zu reduzieren, dass im Einzelphotonenbereich gearbeitet werden kann. Im Gegensatz dazu ist man bei der Messung von Raman-Streuung aufgrund der intrinsisch geringen Intensität des Messsignals auf Sensoren angewiesen, die diese dennoch detektieren können. Daher ist eine Empfindlichkeit im Einzelphotonenbereich hilfreich.

Wird für zeitaufgelöste Messungen TCSPC eingesetzt, ist der Einsatz von Einzelphotonenzählern, Voraussetzung. Hier sind, neben den üblichen Wünschen nach hoher IDE und SDE der Detektoren, auch deren benötigte Abklingzeit bis zur nächsten Messung sowie die Anzahl erzeugter Pulse ohne Lichteinstrahlung (sog. *Dark Counts*, DC) von Bedeutung.

SNSPD erreichen sehr hohe Zählraten von mehreren hundert MHz und weisen durch die Kühlung auf etwa 4 K besonders geringe DC auf. In der Literatur wurde gezeigt, dass eine sehr hohe IDE möglich ist (Abschnitt 2.1). Bei Optimierung des Gesamtsystems kann dies zu einer sehr guten SDE führen. Von daher bieten SNSPD sehr gute Ausgangsvoraussetzungen, um mit der TCSPC-Messtechnik eingesetzt zu werden. Die zeitauflösenden Eigenschaften dieser Detektoren im Detail zu untersuchen, wird nun Bestandteil dieser Arbeit sein.

# 3 Zeitauflösung von optischen Signalen mit SNSPD

In Abschnitt 2.3 wurden bereits die Grundlagen der TCSPC-Technik vorgestellt, welche in dieser Arbeit eingesetzt wird, um die Zeitauflösung von Signalen aus einzelnen SNSPD-Pulsen zu realisieren. In diesem Kapitel werden die Zusammensetzung des Messsystems und die Messmethodiken erläutert, um nachfolgend auf die Messergebnisse und deren Bewertung im Detail einzugehen.

## 3.1 Vorstellung des eingesetzten Messsystems

Das Messsystem, welches im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde, besteht aus drei Komponenten, siehe Abbildung 3.1. Neben dem optischen Aufbau, der für die Signalgenerierung benötigt wird, sind als zentrales Element der Kryostat mit integriertem SNSPD, sowie als dritter Teil die elektronischen Komponenten, die zur Auslese dienen, zu nennen. Die einzelnen Bereiche sind in Abbildung in der Übersicht dargestellt.

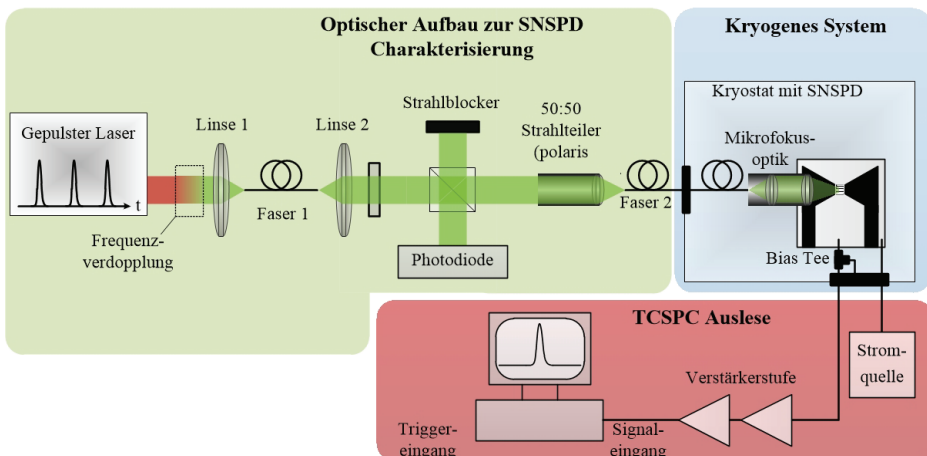


Abbildung 3.1: Das Messsystem teilt sich in drei Bereiche auf: Optischer Aufbau (Abschnitt 3.1.1), Kryogenes Messsystem (Abschnitt 3.1.2) und Auslese (Abschnitt 3.1.3).

### 3.1.1 Optischer Aufbau zur SNSPD Charakterisierung

Im optischen Aufbau, welcher schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt ist, wird ein bei 1040 nm arbeitender Femtosekunden-Kurzpuls-Laser (kurz: fs-Laser), welcher eine Eigenentwicklung des Fraunhofer Institutes für Optik und Feinmechanik (IOF Jena) ist, frequenzverdoppelt. Die reale Umsetzung ist in Abbildung 3.2 zu sehen. Durch die Frequenzverdopplung kann bei einer Ausgangswellenlänge von 520 nm im sichtbaren Bereich gearbeitet werden, bei der die SNSPD untersucht werden sollen. Der infrarote Strahl wird in Abbildung 3.2 in dunkelrot dargestellt, der frequenzverdoppelte Strahl in grün.

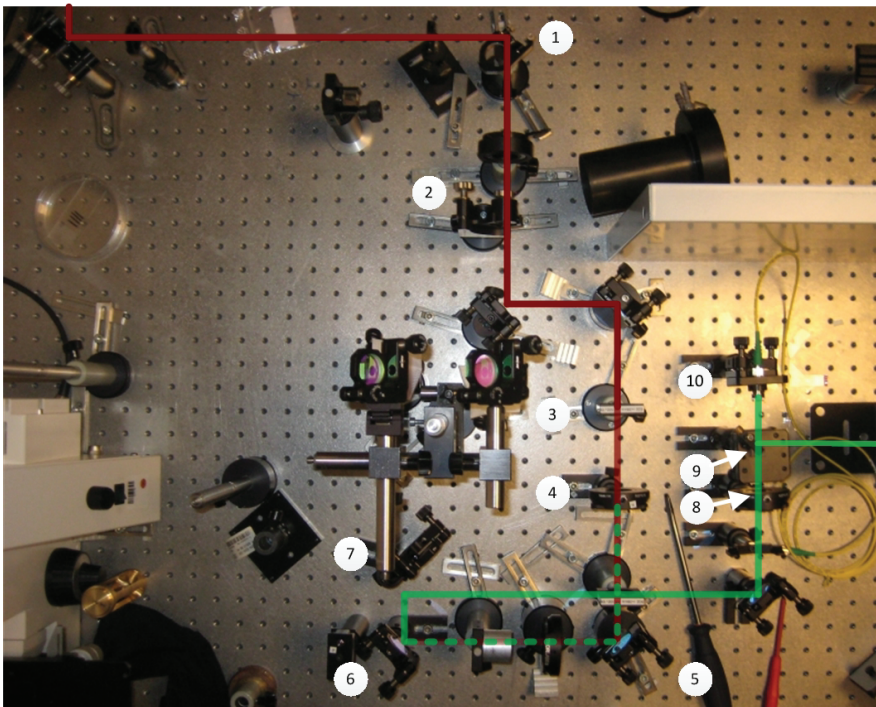


Abbildung 3.2: Strahlungsquelle ist ein fs-Kurzpuls-Laser. Da die SNSPD im sichtbaren Bereich verwendet werden, wird die Wellenlänge durch Frequenzverdopplung auf 520 nm halbiert. Die Strahlführung ist farblich hervorgehoben.

Der vom fs-Laser stammende Strahl wird über einen Klappspiegel (1) durch einen Polarisator und ein  $\lambda/2$ -Plättchen (2) gelenkt. So wird der ursprünglich elliptisch polarisierte Strahl linear polarisiert. Über zwei Spiegel wird der Strahl auf eine bündelnde Linse mit einer Brennweite von 80 mm (3) umgelenkt. Diese Linse fokussiert den Strahl in einen doppelbrechenden Beta-Barium-Borate-Kristall(BBO-Kristall) (4) in dem die Frequenzverdopplung stattfindet. Eine zweite Linse mit gleicher Brennweite parallelisiert den Strahl wieder. Die beiden nachfolgenden dichroitischen Spiegel (5, 6) filtern die Grundwelle heraus. Ein weiterer

Klappspiegel (7) lenkt den Strahl auf einen Polarisator (9) mit  $\lambda/2$ -Plättchen (8). So kann die Intensität, die auf die Einkoppeloptik (10) und damit auch auf die Glasfaser trifft, eingestellt werden. Mit diesem Teil wird die Triggerdiode für die TCSPC-Messungen betrieben. Der vom Strahlteiler um  $90^\circ$  reflektierte Anteil wird ebenfalls in eine Faser eingekoppelt. Diese Faser führt das Licht, das durch den Anschluss am Kryostaten zum Detektor geleitet wird. Die optische Leistung wird so eingestellt, dass der Einzelphotonenbetrieb sicher gestellt werden kann. Vom ersten Einkoppeln in diese Faser gehen durch die Steckverbindungen und die eingesetzte Mikrofokusoptik nochmals etwa 25 % verloren.

### 3.1.2 Kryogenes System

Das kryogene Messsystem wurde, basierend auf einem kommerziell erwerblichen Kryostat (Typ: HDL 8, IRLabs, Inc., USA), aufgebaut. Die zuverlässige Fixierung der Komponenten auf der 4-K-Stufe wird durch eine Lochrasterplatte ermöglicht. Um das zu messende Lichtsignal im geschlossenen System zum SNSPD zu leiten, werden optisch Fasern verwendet. So können Verluste, wie sie beim Einsatz von optischen Fenstern im Kryostaten entstünden, sowie der Wärmeeintrag zum Detektor minimiert werden. Im System wird eine Singlemode-Faser des Typs SMC-460 von Schäfter+Kirchhoff GmbH (Deutschland) eingesetzt. Im Kaltbereich angelangt, wird das Licht aus der Faser mit einer Mikrofokusoptik (Typ: 60FC-4-M12-33 und 5M-M12-S, Schäfter+Kirchhoff GmbH) auf einen Fokusbereich von  $\approx 4 \mu\text{m}$  (FWHM) gebracht. Ein dreiachsiger, geregelter Piezoaktor (Typ: Tritor 400 SG, Piezosystem Jena, Deutschland) erlaubt auch im kalten Zustand eine genaue Positionierung des Fokusspots auf dem Detektor. Die Position der Fokusohtik kann im sub- $\mu\text{m}$ -Bereich verstellt werden, sodass relative Verschiebungen der einzelnen Komponenten zueinander, die durch die Abkühlung des Systems entstehen, ausglich werden können.

Um die einzelnen Komponenten im System anzuordnen, mussten bei der Konstruktion des Messsystems drei Punkte beachtet werden. Zunächst war Betrieb des SNSPD bei etwa 4 K sicherzustellen. Dies setzte eine gut thermisch leitende, direkte Montage auf der mit flüssigem Helium gekühlten Kaltplatte voraus. Zudem musste der Piezoaktor so positioniert werden, dass dieser nahe der Raumtemperatur betrieben werden konnten, um den vollen Verstellweg von  $320 \mu\text{m}$  auch im eingekühlten Zustand zu erhalten. Zu guter Letzt war der Arbeitsabstand der Mikrofokusoptik von 10 mm einzuhalten. Insbesondere die letzten beiden Punkte sind in Kombination zu betrachten, da die Fokusohtik, wie oben beschrieben, durch den Piezoaktor gehalten und positioniert wird. Für die Konstruktion bedeutete der Betrieb des Aktors bei Raumtemperatur vor allem, dass eine mechanisch stabile, aber dennoch thermisch isolierte Montage auf der Kaltplatte erfolgen musste. Hierzu wurden Bolzen aus Glasfaserverstärktem Kunststoff (GFK) verwendet, welche eine sehr geringe Wärmeleitung aufweisen ( $0,8 \text{ W/m} \cdot \text{K}$  [90]). Um den Detektor von der warmen Arbeitsumgebung des Piezoaktors zu isolieren, ist ein zusätzlicher thermischer Schild nötig. Dieser thermische Schild wird zwischen Piezoaktor bzw. Fokusohtik und dem Detektor am 77 K Schirm befestigt und somit auf diese Temperatur gekühlt. Das Licht aus der Optik kann nur durch eine kleine Öffnung zum SNSPD gelangen.



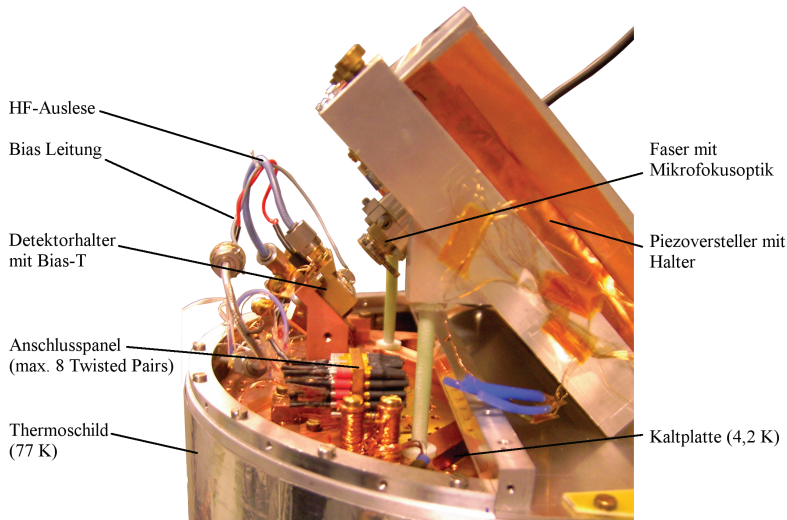


Abbildung 3.3: Seitenansicht des Kryostatinneren auf die 4 K-Kaltplatte.

Abbildung 3.3 zeigt die Seitenansicht des offenen Kryostaten ohne den 77 K Schirm im oberen Bereich, da dieser den Detektor und die Anschlüsse verdecken würde. Die Anordnung im  $45^\circ$  Winkel ist auf den begrenzten Platz im Innenraum des Kryostaten und auf eine möglichst geringen Höhe des Sockels für den Detektortisch zurückzuführen. Letzteres ist aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Kupfer [91] und GFK (Befestigung des Aktors) existentiell. Da die Ausrichtung der Komponenten zueinander bei Raumtemperatur erfolgt und sich die Materialien während des Abkühlvorgangs unterschiedlich stark kontrahieren, müssen die relativen Längenänderungen in einem Bereich gehalten werden, der im Ansteuerungsbereich des Piezoaktors liegt. Die Untersuchung der Längenänderungen entlang der einzelnen Achsen wird in Abschnitt 3.2 erläutert.

Die Halterung für den Piezoaktor wurde aus Aluminium gefertigt. Die verwendete Single-mode-Faser wurde nach dem Abisolieren bis hinunter zum Mantelmaterial in einen Aluminiumdrehteil mit Stycast vakuumdicht zu einer Vakuumdurchführung vergossen (siehe Abbildung 3.4).

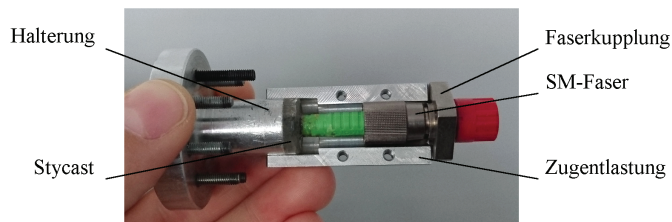


Abbildung 3.4: Vakuumdurchführung der Glasfaser.



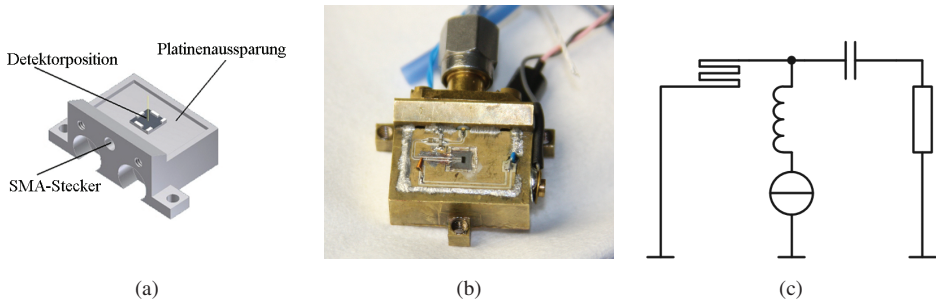


Abbildung 3.5: (a) Detektortisch im Autodesk Inventor Modell, (b) Foto des real aufgebauten Detektortisches inklusive bestücktem Bias-Tee und (c) Ersatzschaltbild des Bias-Tee.

Der Detektortisch, siehe Abbildung 3.5a, wurde nach dem Vorbild des am KIT für SNSPD-Messungen verwendeten Detektorhalters gefertigt. Es wurde eine Ausfräsung für das spätere Einsetzen der Bias-Tee Platine vorgesehen, welche die Zuleitungen für den Biasstrom wie auch den Auslesepfad mit seinen Coplanarleitungen enthält. Abbildung 3.5b zeigt den fertigen, mit allen Bauteilen bestückten Detektortisch. Für eine gute elektrische Leitfähigkeit zwischen Platinenoberseite und dem vergoldeten Detektortisch, wird Indium verwendet. Die restlichen Komponenten des Bias-Tees wurden hingegen aufgelötet. Für den Bias-Tee kamen Breitbandbauteile (Breitbandkapazität 12 nF, Piconics, Typ CC45T47K240G5; konische Breitbandinduktivität 84  $\mu\text{H}$ , Presidio Components, Typ MBB0203X123MGP5C83) sowie bereits am KIT untersuchte, kryotaugliche Widerstände (IMS Resistors, RCC-0402-1000F) zum Einsatz. Zur Reduktion von Störungen erfolgt der Anschluss der stromführenden Biasleitung über einen eingeschraubten Durchgangsfilter (Telemeter, Pi-Filter, Typ 33823003D). Die Masseleitung wird seitlich am Tisch angeschraubt.

Abbildung 3.5c zeigt das Ersatzschaltbild des Bias-Tee sowie den schematisch durch die Mäanderlinien dargestellten Detektor. Der 50  $\Omega$  Widerstand, der für die Leitungsanpassung verantwortlich ist, setzt sich aus zwei Parallelwiderständen mit je 100  $\Omega$  zusammen.

### 3.1.3 Signalauskopplung

Der Auslesepfad wird über eine SMA Leitung (semi-rigid) zum Äußeren des Kryostaten geführt. Dort wird das Signal mit Hilfe von zwei rauscharmen, invertierenden Raumtemperaturverstärkern (Minicircuits, ZX60-33LN+) verstärkt. Für die Auswertung kommen Oszilloskop (Rhode und Schwartz, Typ RTO 1012), eine rauscharme Stromquelle sowie die TCSPC-Messelektronik (Becker und Hickl, Simple-Tau-130-EM-DX) zum Einsatz. Da letztere nur negative Pulsamplituden verarbeiten kann, wird ein zusätzlicher passiver Inverter (Becker und Hickl) im Signalverlauf verwendet.

### 3.1.4 Einbau des Detektorchips

Der zu untersuchende Detektorchip wird vor dem Einkühlvorgang in den Halter eingebaut. Zunächst erfolgt hierzu eine Reinigung des Chips durch je 5 Minuten in Aceton und Iso-propanol im Ultraschallbad. Nach anschließender Trocknung mit Druckluft wird der Chip mittels Leitsilber auf dem Halter in der Fräsung für den Detektor in der Platine befestigt (Abbildung 3.5b). Durch die optimale thermische Ankopplung mit Leitsilber können auftretende DC deutlich reduziert werden [92]. Die Chipoberfläche ist dann auf einer Ebene mit der Bias-Tee Platine. Der elektrische Anschluss zwischen Chip und Bias-Tee, erfolgt über Drahtbonden mit Aluminium.

#### Orientierung auf dem Chip bei tiefen Temperaturen

Die initiale Justage des Detektors erfolgt manuell bei geöffnetem System bei Raumtemperatur. Da durch den Abkühlvorgang die verwendeten Materialien unterschiedlich stark kontrahieren, wurde die Montage eines Piezoaktors bei der Konstruktion des Systems vorgesehen. Mit diesem kann die Mikrofokusoptik hochpräzise über dem Detektorchip in Submikrometerschritten verschoben werden. Allerdings ist für die Positionierung eine Möglichkeit zur Bestimmung der korrekten Position bei geschlossenem System notwendig. Hierzu wird das in Abbildung 3.6 dargestellte Aufbau zusammen mit einer speziell strukturierten, reflektierenden Oberfläche auf dem Detektorchip genutzt.

Kollimiertes Licht aus einem Helium-Neon-Laser mit einer Zentralwellenlänge von 594 nm passiert einen 50:50 Strahlteiler (Thorlabs, BS010) und wird anschließend in eine Faser eingekoppelt. Der um 90° abgelenkte Strahl wird geblockt. Das Licht in der Faser wird mit Hilfe des Piezoaktors und der Mikrofokusoptik auf die Reflektionsfläche des Detektorchips fokussiert. Die aus Gold aufgebrachte Hilfsstruktur ist in Abbildung 3.7a im Detail dargestellt. Die Abfolge zwischen reflektierenden und nichtreflektierenden Stellen gibt genauen Aufschluss auf die Position. Die Kenntnis der genauen relative Lage von Hilfsstruktur und aktiver Detektorfläche, ermöglicht es, die Position des Detektors auf etwa  $\pm 1 \mu\text{m}$  zu bestimmen.

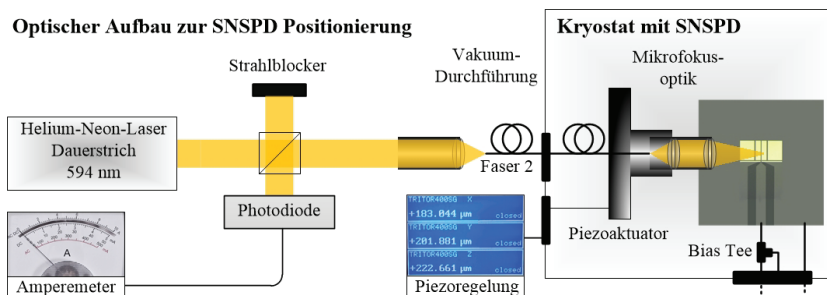


Abbildung 3.6: Optischer Aufbau zur Orientierung im eingekühlten Zustand [93].

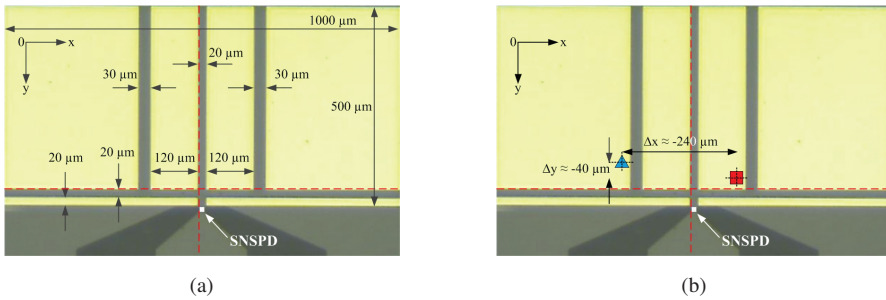


Abbildung 3.7: (a) Ausschnitt aus einer Mikroskopaufnahme, die die Hilfsstruktur auf dem Detektorchip mit Bemaßungen zeigt. Die x- und y-Achsen stellen die Piezobewegung in die entsprechenden Richtungen dar. Der Abstand der rot gestrichelten Linie zum Detektor in x-Richtung beträgt  $10 \mu\text{m}$  in y-Richtung sind es  $50 \mu\text{m}$ . (b) beispielhafte Positionsveränderungen durch den Einkühlungsprozess. Das rote Quadrat stellt die Positionierung bei Raumtemperatur dar; das blaue Dreieck zeigt die grobe Position nach dem Einkühlvorgang.

Abbildung 3.7b zeigt die Unterschiede in der Position vor und nach dem Einkühlen des Messsystems. Entlang der x- und y-Achse zeigen sich unterschiedlich starke Verschiebungen. Die Positionierung bei Raumtemperatur erfolgt grob auf die mit einem blauen Dreieck markierte Position. Nach dem Einkühlen befindet sich der Spot in etwa auf der Position des roten Quadrats. Durch Vortests konnten entlang der Achsen reproduzierbare Verschiebungen von  $\Delta x = 240 \mu\text{m}$  und  $\Delta y = 40 \mu\text{m}$  festgestellt werden. Diese können dank entsprechenden Vorbehalten bei der Raumtemperaturjustierung und des eingesetzten Piezoaktuators im eingekühlten Zustand zuverlässig kompensiert werden.

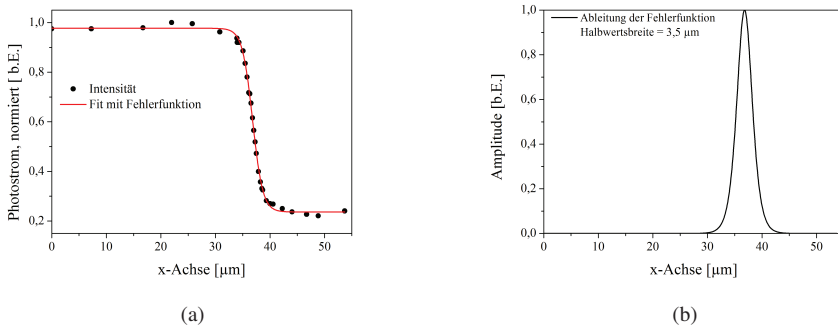


Abbildung 3.8: (a) Intensität des gemessenen Photostroms bei Überstreichen der Kante der zur Orientierung genutzten Goldstruktur. In rot ist der Fit mit der Fehlerfunktion dargestellt. (b) Die Ableitung der angepassten Fehlerfunktion ergibt eine Gaussfunktion (schwarz) mit einer Halbwertsbreite von  $3,5 \mu\text{m}$ . Der minimale erreichbare Fokusbereich entspricht somit ungefähr zu den Dimensionen des SNSPD.

Abbildung 3.8a zeigt den Intensitätsverlauf des Photostroms beim Überstreichen einer Kante der Goldstruktur von reflektierend auf nicht reflektierend. Der Übergang ist sehr scharf. Für die Bestimmung des Übergangspunktes wird die maximale ( $I_{\max}$ ) und die minimale Intensität ( $I_{\min}$ ) ermittelt. Der korrekte Messpunkt entlang einer Achse ergibt sich durch  $x_i = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{2}$ . Der Fokusedurchmesser kann durch Ableiten der Fitfunktion (Fehlerfunktion) ermittelt werden (Abbildung 3.8b). Die Halbwertsbreite liegt bei etwa  $3,5 \mu\text{m}$ .

### Positionierung der Optik bei 4 K

Die Positionierung erfolgt in zwei Schritten. Anhand des im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Verfahrens, wird die Mikrofokusoptik nach Auffinden der Kanten der Goldstruktur zunächst grob über dem SNSPD positioniert. Im Anschluss wird durch geringe Anpassung der Position die Zählrate (*Countrate*, CR) optimiert. Bei maximaler CR kann davon ausgegangen werden, dass nahezu alle Photonen auf den Detektor treffen.

## 3.2 Charakterisierung des Messsystems

Um mittels SNSPD optische Signale im Einzelphotonenbereich per TCSPC möglichst hoch zeitlich aufzulösen, ist es notwendig, die bestmögliche Zeitauflösung bzw. den kleinstmöglichen GSJ zu erzielen. Der SNSPD selbst trägt hier maßgeblich dazu bei. Zudem ist es für die Bestimmung des Detektorbeitrags zur IRF notwendig, die sonstigen beitragenden Komponenten möglichst genau im Vorfeld zu bestimmen.

Für reproduzierbare Ergebnisse muss das verwendete Messsystem im Vorfeld charakterisiert werden. Hierbei kann zwischen einer Grundcharakterisierung des Systems, die einmalig durchgeführt wird und den bei jeder Messung wiederkehrenden Überprüfungen im Rahmen eines festen Messablaufs unterschieden werden. Beides dient dazu, die Bedingungen während der Messungen konstant zu halten und Abweichungen möglichst schnell aufzudecken.

### 3.2.1 Beitrag einzelner Komponenten im Auslesepfad zum Systemjitter

Da die erreichbare zeitliche Auflösung des Systems durch Messung der IRF erfolgt (Abschnitt 2.3), ist es wichtig, so viele beitragende Parameter des Systems wie möglich zu bestimmen. Hierzu wurde im Vorfeld die Messelektronik selbst gemäß den Vorgaben durch den Hersteller elektronisch vermessen.

Durch angepasste Längen der optischen Fasern und elektrischen Leitungslängen wird sicher gestellt, dass Photonen, die die Photodiode triggern und das Photon, das den SNSPD-Puls auslöst, aus demselben optischen Puls stammen. Dadurch kann der Anteil des Lasers an der

IRF bei allen Messungen, die in diesem Kapitel vorgestellt werden mit  $\sigma_{\text{PPJ}} = 0$  angenommen werden. Geht man nicht davon aus, dass weitere Komponenten zur IRF beitragen, kann ebenfalls  $\sigma_{\text{s,K}} = 0$  gesetzt werden. Somit reduziert sich Gleichung 2.6 zu:

$$\sigma_{\text{IRF}} = \sqrt{\sigma_{\text{TCSPC}}^2 + \sigma_{\text{SNSPD}}^2 + \sigma_{\text{Verstärker}}^2 + \sigma_{\text{Laser}}^2} \quad (3.1)$$

Zudem lässt sich die Standardabweichung durch Gleichung 2.7 direkt zur Halbwertsbreite und damit zur erreichbaren Zeitaufösung umrechnen.

Die Charakterisierung der Auslese erfolgte separat. Zunächst wurde die IRF der TCSPC-Elektronik gemäß den Vorgaben des Herstellers gemessen [56]. Das Signal aus einem Puls-generator wird über einen Leistungsteiler aufgesplittet und gelangt durch unterschiedliche Kabellängen zur Messelektronik (Abbildung 3.9). Das 1m lange Kabel wird mit dem CFD-Eingang der TCSPC-Elektronik verbunden, an den normalerweise der Detektor angeschlossen ist. Das zweite Kabel wird mit 2,2 m Länge an den Triggereingang der Elektronik angeschlossen, was das zu beobachtende Zeitfenster auf 6 ns begrenzt.

Die vom Hersteller vorgegebenen Werte für Pulslänge, -höhe sowie Repetitionsrate wurden am Pulsgenerator eingestellt. Das so entstandene Histogramm (Abbildung 3.10) deckt sich in seiner Gaussform und einer Halbwertsbreite von 6,9 ps mit den Angaben des Herstellerdatenblatts.

Für die Ermittlung der IRF wurde ein Laser mit einer Repetitionsrate von 75 MHz verwendet. Durch die kurze Pulslänge von  $\ll 1$  ps wird der Beitrag zur IRF seitens des Lasers wird zunächst  $\sigma_{\text{Laser}}^2 \approx 0$  angenommen. Hierdurch reduziert sich Gleichung 3.1 zu:

$$\sigma_{\text{IRF}} = \sqrt{\sigma_{\text{SNSPD}}^2 + \sigma_{\text{TCSPC}}^2 + \sigma_{\text{Verstärker}}^2} \quad (3.2)$$

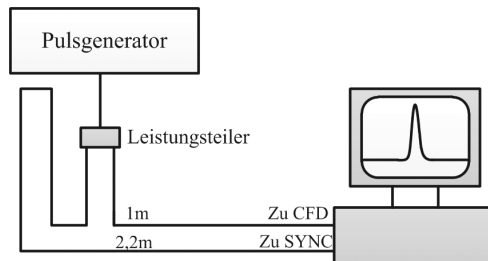


Abbildung 3.9: Messaufbau zur Charakterisierung des Jitterbeitrages der TCSPC-Elektronik.

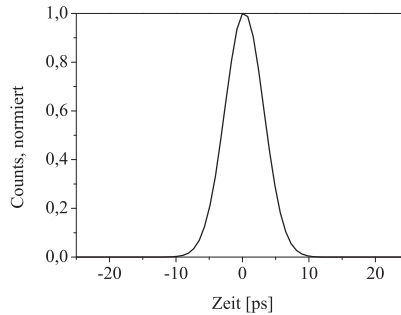


Abbildung 3.10: Normiertes Histogramm der TCSPC-Elektronik, gemessen nach Vorgaben des Herstellers gemäß Schema in Abbildung 3.9. Die Halbwertsbreite liegt bei 6,9 ps.

Mit Gleichung 2.7 und 3.2 kann an dieser Stelle eine Maximalabschätzung des SNSPD-Beitrages durchgeführt:

$$\text{FWHM}_{\text{SNSPD}} = \sqrt{\text{FWHM}_{\text{IRF}}^2 - \text{FWHM}_{\text{TCSPC}}^2 - \text{FWHM}_{\text{Verstärker}}^2} \quad (3.3)$$

Ohne Berücksichtigung des Anteils durch die Verstärker ergibt sich somit bei den Halbwertsbreiten von  $\text{FWHM}_{\text{IRF}} = 22,5$  ps und  $\text{FWHM}_{\text{TCSPC}} = 6,9$  ps ein maximaler SNSPD-Beitrag von  $\text{FWHM}_{\text{SNSPD}} \leq 21,4$  ps für den besten Standard-Mäander (Chip 3NbN281-5).

### 3.2.2 Durchführung der Messung

Die durchgeführten Messungen wurden zur besseren Vergleichbarkeit nach einem festen Schema durchgeführt. So ist es möglich, Probleme rechtzeitig zu erkennen und auf die Ursache zu schließen.

#### 1. Überprüfung der Anschlüsse:

Nach Chippositionierung und Zusammenbau des Systems werden zunächst vor dem Einkühlvorgang alle Anschlüsse (Ausleseleitung,  $R_{300\text{K}}$ -Widerstand) überprüft.

#### 2. Kontrolle der Anschlüsse nach Einkühlvorgang:

Nach dem Einkühlen des Systems wird kontrolliert, ob der SNSPD supraleitend ist. Nach dem Anschließen des Biasstroms wird der Wert für den kritischen Strom ohne Beleuchtung ( $I_{c,d}$ ) notiert.

#### 3. Anschluss der Leitungen:

Am optischen Messaufbau werden alle nötigen Komponenten zusammengeführt und angeschlossen. Dies betrifft die SMA-Ausleseleitung (inkl. TCSPC-Elektronik oder Oszilloskop), Piezocontroller sowie eine optische Faser für die Positionsermittlung.

4. **Positionssuche:** Mit Hilfe des entsprechenden optischen Aufbaus (Abbildung 3.6) wird die Position des Detektors nach dem Einkühlen ermittelt (Abschnitt 3.1.4)
5. **Ermittlung des Arbeitspunktes:** Zur Positionssuche wird ein cw-Laser (engl. *continuous wave*) eingesetzt, dessen Licht ebenfalls in eine Faser eingekoppelt wird und so zum Detektor gelangt (siehe Abschnitt 3.1.4). Im Anschluss wird die Faser getauscht und die Laserleistung des fs-Lasers wird so eingestellt reduziert, dass in der Faser, welche zum Detektor führt,  $< 20$  pW erreicht werden und damit der Betrieb im Einzelphotonenbereich sichergestellt ist. Der Wert für den erreichbaren kritischen Strom bei Beleuchtung ( $I_{c,1}$ ) und der Arbeitspunkt  $I_b$  werden ermittelt. Im Anschluss wird durch Nachjustierung der Position der Fokusoptik die CR des SNSPD maximiert.
6. **Messdurchführung:** Nach den Voruntersuchungen werden die unterschiedlichen Parameter variiert die TCSPC-Messungen durchgeführt.
7. **Datenauswertung:** Sie erfolgt im Anschluss an die Messung nach Export der Daten am PC.

### 3.3 Zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung mit SNSPD

Die erreichbare Zeitauflösung ist abhängig von einigen Größen, die sich zum Teil gegenseitig beeinflussen. Zum Einen gibt es die Parameter, die vom SNSPD selbst herrühren. Zum Anderen die, die unabdingbar von der Ausleseelektronik und den weiteren elektronischen Komponenten im Auslesepfad bestimmt werden.

So muss zunächst ein geeigneter Arbeitspunkt gewählt werden. Im Anschluss wird anhand eines Sensors eine vollständige Charakterisierung der maßgeblichen Parameter, welche die Zeitauflösung des Systems beeinflussen, durchgeführt. Dies wird exemplarisch anhand eines ausgewählten Chips (Chip Nr. 3NbN281-5, Schichtdicke: 7,5 nm, Design Abbildung 3.23) diskutiert.

Da die elektrischen Eigenschaften des SNSPD maßgeblich zum GSJ beitragen, wird der Einfluss einer verringerten kinetischen Induktivität ( $L_{kin}$ ) auf die Zeitauflösung untersucht. Um die geometrische Einflüsse zu minimieren, wird diese Untersuchung nicht nur an meanderförmigen SNSPD, sondern auch an parallel verlaufenden, gerade designten Chips durchgeführt.

#### 3.3.1 Wahl des Arbeitspunktes

Für die Wahl eines geeigneten Arbeitspunktes ist zunächst die Abhängigkeit der Empfindlichkeit bzw. DE wichtig. Diese lässt sich bei bekannter Photonenzahl bzw. optischer Leistung auf dem Sensor gemäß

$$DE [\%] = \frac{\text{Anzahl Photonen/s}}{\text{Anzahl Counts/s} - \text{Anzahl DC /s}} \quad (3.4)$$

bestimmen. Da eine möglichst hohe DE angestrebt wird, liegen übliche Biasströme bei 90 % des kritischen Stromes und mehr.

Neben den SNSPD-eigenen Anteilen tragen auch die elektronikseitige Bandbreitenbegrenzung zur IRF bei. So gibt der Hersteller der TCSPC-Elektronik die minimale Pulsbreite, die der Elektronik zur Verfügung stehen muss, mit 400 ps an. Dies entspricht einer Bandbreitenbegrenzung von 2,2 GHz. Daher ist es immens wichtig, die Bandbreite der eingesetzten Verstärker auf die Eingangsbandbreite anzupassen. Die Gesamtbandbreite der Verstärker ist auf die Eingangsbandbreite der Elektronik abgestimmt. Für einen optimalen Arbeitspunkt ist es unerlässlich, dass der Sensor möglichst stabil und mit hoher Effizienz arbeitet. Im Idealfall soll das Rauschen, was bei den Einzelphotonenzählern die DC darstellen, möglichst gering sein.

Trägt man nun die Anzahl der Counts sowie die der DC über dem Biasstrom auf (Abbildung 3.11), so fällt auf, dass nahezu keine DC auftreten. Da es sich hierbei um einen statistischen Prozess handelt, ist die DC-Rate (DCR) nicht gleich 0. Für die Ermittlung der DCR werden 3 unabhängige Messungen für jeweils 1 s bei einer Repetitionsrate von 75 MHz durchgeführt. Ergibt sich hierbei bei den Messungen jeweils, dass 0 DC registriert werden, so kann die DCR im Anschluss durch Mittelung der Ergebnisse berechnet werden. Somit lässt sich spezifizieren, dass sich bis weit in den Arbeitsbereich von  $> 90 \% I_c$  DCR von  $< 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  erreichen lassen. Die Messungen erfolgten mit dem in Abschnitt 3.1.1 beschriebenen System bei einer optischen Leistung von  $< 20 \text{ pW}$ . Damit ist gewährleistet, dass die SNSPD im Einzelphotonenbereich arbeiten und pile-up Effekte vernachlässigbar sind (siehe Abschnitt 2.3.3).

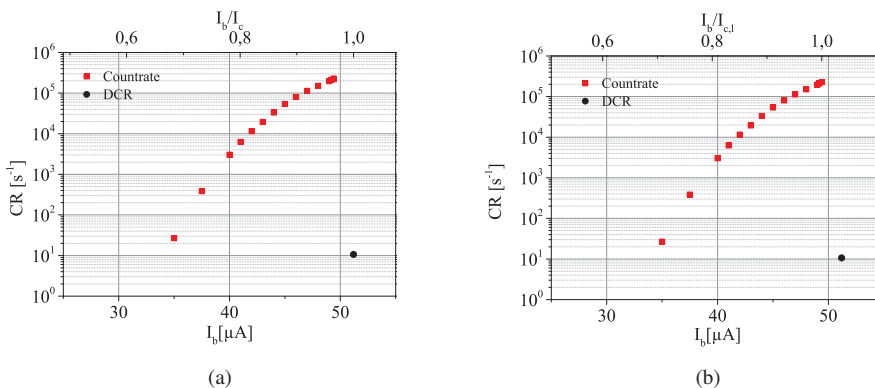


Abbildung 3.11: CR und DCR aufgetragen über  $I_b$  von Chip 3NbN281-5 singlewire.



Abbildung 3.11a und 3.11b zeigen CR und DCR über dem Biasstrom. Den Diagrammen liegen identische Messdaten zu Grunde. Die untere x-Achse zeigt bei beiden den absoluten Wert des Bias-Stroms, die obere zeigt den Anteil des angelegten Biasstroms im Verhältnis zum kritischen Strom. Hier unterscheiden sich die Diagramme aufgrund der Annahme welcher Wert als kritischer Strom definiert für die Berechnung verwendet wird. Im Grunde genommen ist die Definition des kritischen Stromes eindeutig: Er beschreibt den Strom, der benötigt wird, um einen Leiter bei einer festen Temperatur und Magnetfeld in die Normalleitung zu bringen.

Während der Experimente wurde jedoch beobachtet, dass sich der erreichbare kritische Strom leicht verändert, je nachdem ob der Sensor beleuchtet wird ( $I_{c,b}$ ) oder nicht ( $I_{c,d}$ ). Diese Unterscheidung wird in der Literatur oftmals nicht explizit gemacht, was die Bewertung der Ergebnisse erschwert. An einigen Stellen findet sich jedoch, dass anstatt  $I_c$  der sog. Umschaltstrom (*switching current*) [27, 94, 95] als Bezugsgröße verwendet wird. Meist findet sich dieser Zusammenhang im Bezug auf mehrere parallel geschaltete SNSPD-Streifen. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, dass dieses Phänomen nicht unbekannt ist. Wodurch es verursacht wird, wurde jedoch bisher nicht beschrieben.

Der beobachtete Effekt der  $I_c$ -Reduzierung bei Beleuchtung verstärkt sich, wenn mehrere Streifen parallel geschaltet arbeiten (Abschnitt 3.3.3). Die angegebenen Arbeitspunkte der in dieser Arbeit gezeigten Messungen beziehen sich immer auf den erreichbaren kritischen Strom bei Beleuchtung, was in Abbildung 3.11b mit dem zusätzlichen Index „l“ kenntlich gemacht wird. Als Nebeneffekt bedeutet dies, dass messbare DC teilweise erst einsetzen, wenn  $I_b/I_{c,l} > 1$  wird.

### 3.3.2 Musterhafte Untersuchung von jitter-beeinflussenden Parametern

Neben den bereits erwähnten Kriterien für die Wahl eines geeigneten Arbeitspunktes gibt es weitere Parameter, die die Zeitauflösung des Gesamtsystems beeinflussen. Hier sind insbesondere vier maßgebliche Kategorien zu unterscheiden. Zunächst gibt es allgemeine Einflüsse von der Signalbandbreite. Dazu kommen rein elektronikseitige Parameter wie das ZC-Level, das einen Korrekturmechanismus für geringere Jitterzeiten darstellt. Der Einfluss des Abtastniveaus (CFD-Level) auf die Zeitauflösung ist hingegen sowohl von der Auslese als auch von den Pulsformigenschaften des SNSPD abhängig. Zuletzt ist ebenfalls der angelegte Biasstrom durch den SNSPD ein wichtiger Parameter, der die Zeitauflösung mitbestimmt. Alle diese Parameter müssen im richtigem Verhältnis zueinander stehen, um optimale Ergebnisse zu erzielen. Somit ergibt sich ein relativ großes Parameterfeld, das im Folgenden Stück für Stück exemplarisch anhand eines SNSPD (3NbN281-5) erläutert werden soll.

## Einfluss der Signalbandbreite

Für jegliche Messungen ist im Grunde genommen ein analoges Signal, das noch alle ursprünglichen Frequenzen und Intensitäten enthält, das Optimum für die Weiterverarbeitung. Im realen Einsatz von Messelektronik lässt sich jedoch ein Signalverlust oftmals nicht umgehen, da die meisten Bauteile eine intrinsische Hochfrequenzcharakteristik aufweisen. Muss ein Signal verstärkt werden, wird das Signal mit dem festgelegten Frequenzgang des Verstärkers zwar verstärkt, aber nicht alle Frequenzen in gleichem Maße. Es entsteht eine natürliche Bandbreitenbegrenzung, die das Ursprungssignal unwiederbringlich verändert.

Bei den Messungen dieser Arbeit ist der Einsatz von Verstärkern unabdingbar, da die Pulsamplitude der SNSPD selbst zu gering ist, um die eingesetzte TCSPC-Elektronik zu betreiben. Es muss sicher gestellt sein, dass die Eingangsamplitude der Pulse  $< 500$  mV beträgt, aber hoch genug ist, sodass eine stabile CR erreicht wird und ein optimaler Arbeitspunkt durch Parametervariation eingestellt werden kann.

Um den Einfluss der Bandbreitenbegrenzung zu untersuchen, wurden im Vorfeld Messungen unternommen, um das Messsystem weitestgehend elektronisch zu charakterisieren. Der Aufbau ist in Abbildung 3.12 dargestellt. Abbildung 3.13 zeigt den Vergleich der Verstärkercharakteristik und Herstellerangaben für den einzelnen Verstärker (a) und in einen Vergleich zwischen einzelem zwei in Reihenschaltung betriebenen Verstärkern (b). Ausgehend von den Ergebnissen aus Abschnitt 3.2.1, wurde der Messaufbau so abgeändert, dass das Signal mit Dämpfungsgliedern zunächst abgeschwächt wurde.

Im Nachgang konnte das Signal durch eine veränderliche Verstärkerkette wieder auf den ursprünglichen Pegel gebracht werden. Das zu verstärkende Eingangssignal wurde so gewählt, dass Form und Breite der elektronisch erzeugten Pulse nach den Verstärkern in etwa denen der SNSPD Signale entsprachen. Verwendet wurden ausschließlich identische Verstärker. Die effektive Bandbreite der Verstärkerkette berechnet sich laut [96] gemäß Gleichung 3.5.

$$f_{\text{eff}} = \frac{1}{\sqrt{\sum f_i^{-2}}} \quad (3.5)$$

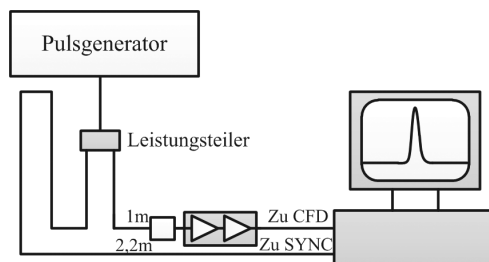


Abbildung 3.12: Messaufbau zur Charakterisierung des Jitterbeitrages der TCSPC-Elektronik bei Einsatz von Verstärkern. Das Messschema wurde aus Abbildung 3.9 wurde entsprechend angepasst.

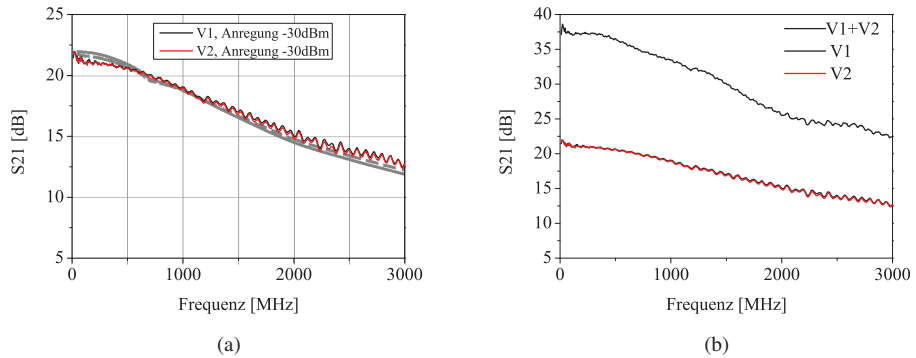


Abbildung 3.13: Charakteristika der eingesetzten Verstärker (a) Vergleich von  $S_{21}$  zwischen Herstellerangaben (grau hinterlegte Kurven) und Messung. (b) zeigt den Vergleich von  $S_{21}$  zwischen einem und zwei Verstärkern in Reihe.

Abbildung 3.14 zeigt die Ergebnisse der Messungen beim Einsatz von unterschiedlich vielen Verstärkern, wobei Abbildung 3.14a die Messungen im Vergleich zeigt. Überprüft wurde der korrekte Messaufbau durch Abgleich der Ergebnisse mit den Herstellerangaben der TCSPC-Elektronik. In Abbildung 3.14b wurden die Kurven für den besseren Vergleich der Halbwertsbreiten bzw. erreichbaren Zeitauflösung normiert.

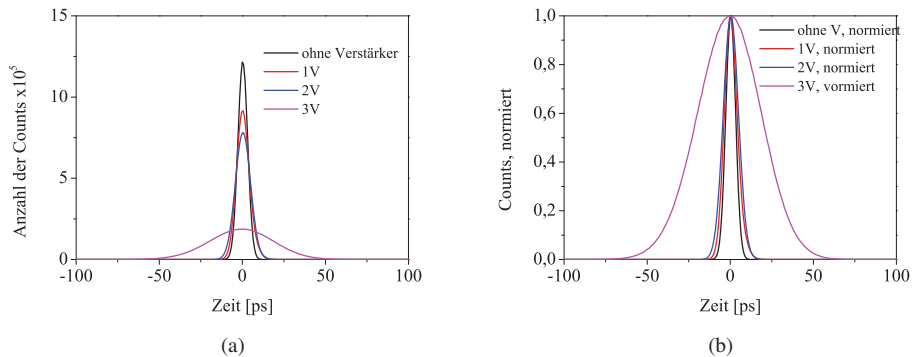


Abbildung 3.14: Messung der erreichbaren Zeitauflösung beim Einsatz von bis zu drei in Reihe geschalteten Verstärkern. (a) zeigt die absoluten Messergebnisse, (b) die zum besseren Vergleich normierten Ergebnisse.

Tabelle 3.1: Einfluss der Bandbreite auf die erreichbare Zeitauflösung.

Verstärkeranzahl	$f_{\text{eff}}$ [GHz]	Zeitauflösung [ps]
ohne	$\infty$	6,9
1	3	9,1
2	2,1	10,8
3	1,7	44,9

Es lässt sich gut erkennen, dass sich die Ergebnisse mit steigender Verstärkeranzahl in Reihe bzw. geringerer zur Verfügung stehender Signalbandbreite verschlechtern. Die erreichbare Zeitauflösung nimmt drastisch ab. Folglich sollte immer auf die Konfiguration mit der größtmöglichen Bandbreite (bzw. kleinstmöglichen Verstärkeranzahl) zurückgegriffen werden. Um dieses zu ermöglichen, wurden die verwendeten NbN-Schichten der untersuchten SNSPD im Vergleich zu hocheffizienten Chips relativ dick gewählt (ab etwa 6,5 nm). Durch den höheren Biasstrom ist es möglich mit nur zwei Verstärkern auszukommen. Tabelle 3.1 fasst die Ergebnisse in Zahlen zusammen.

An dieser Stelle muss allerdings erwähnt werden, dass der Einfluss der Abschwächglieder auf das Signal nicht einzeln untersucht werden kann. Es hat sich bei zusätzlichen Experimenten gezeigt, dass sich die zeitliche Auflösung etwas verbessert, wenn die Abschwächer mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden. Das bedeutet, dass deren Temperaturrauschen die erreichbare zeitliche Auflösung der gemessenen IRF beeinflusst. Die Kühlung führte allerdings zu starkem Schwingen der Verstärker, sodass keine zuverlässigen Messungen durchgeführt werden konnten. Unter diesen Voraussetzungen sollten die Ergebnisse der Untersuchung des Bandbreiteneinflusses vor allem als Tendenz für das Verhalten bei Reduzierung der Bandbreite gewertet werden.

Da eine negative Polarität der Pulse an den Elektronikeingängen gewährleistet werden muss, wird das Diodensignal ebenfalls durch einen invertierenden Verstärker geschickt. Der Einfluss auf die Zeitauflösung seitens der Triggerdiode ist vernachlässigbar, wenn die Triggerdiode über eine ausreichend hohe Bandbreite verfügt. Dies wurde im Vorfeld durch entsprechende Auswahl sichergestellt.

### Einfluss der Flankensteilheit

Nach der Photonenabsorption wird in sehr kurzer Zeit zunächst ein kleiner Teil des supraleitenden Streifens normalleitend. Zeitlich kann bei der Anstiegsflanke von etwa 100 ps ausgegangen werden. In [33, 127 ff.] zeigen sich unter Annahme dieser Zahl gute Übereinstimmungen bei der Simulation der Detektorsignale. Diese Zeiten können am Ausgang aufgrund der eingesetzten Verstärker nicht mehr direkt gemessen werden. Ein SNSPD-Puls, wie in Abbildung 3.15a dargestellt, besitzt demnach eine sehr steile Anstiegsflanke.

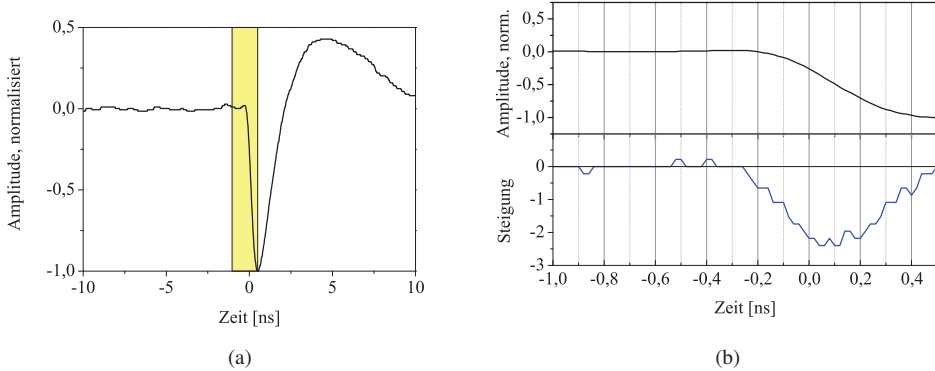


Abbildung 3.15: (a) Einzelphotonenpuls eines SNSPD (b) oben: Ausschnitt des SNSPD Pulses, unten: Steigung bzw. 1. Ableitung des SNSPD-Pulses.

Ein Teil des Jitters entsteht durch die Variation (2.3.2) dieser Anstiegsflanke. Daher ist es zu erwarten, dass der geringste Jitter dort auftritt wo die Kurve die betragsmäßig höchste Steigung besitzt (Abbildung 3.15b, unten). Der rechts gezeigte Bereich für den die Steigung berechnet wurde, ist in Abbildung 3.15a gelb hinterlegt.

Abbildung 3.16 zeigt das Abtastlevel (CFD-Level), welches über der erreichbaren Zeitauflösung aufgetragen wurde. Das CFD-Level stellt die Eingangsschwelle für Pulse dar, die von der Elektronik registriert werden. Alle Pulse oder auch Störungen auf der Leitung, die unterhalb dieser Schwelle liegen, werden für Messungen nicht berücksichtigt. Es handelt sich somit um eine Vorfilterung der Pulse. Wird die Triggerschwelle betragsmäßig überschritten, so ist die  $CR \neq 0$ ; es kann ein Histogramm (IRF) erstellt werden.

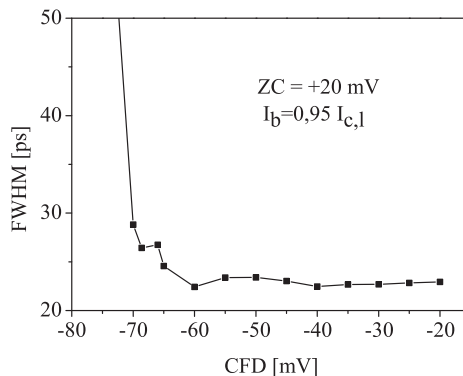


Abbildung 3.16: Abhängigkeit der Zeitauflösung bei Variation des Triggerlevels von Chip 3NbN281-5.

Die Halbwertsbreite dieser IRF stellt die mögliche Zeitauflösung des Systems dar. Für alle SNSPD lässt sich ein ähnlicher Verlauf wie in Abbildung 3.16 ermitteln. Beginnend bei  $CFD = 0 \text{ mV}$  bleibt die erreichbare Halbwertsbreite zunächst nahezu konstant. Danach wird ein lokales Minimum erreicht. Anschließend folgt eine leichte Erhöhung, gefolgt vom nächsten Minimum. Im Anschluss wird die erreichbare Zeitauflösung bei weiterer (betragsmäßiger) Erhöhung der Eingangsamplitude immer schlechter. Die Ursache liegt hier vermutlich darin, dass nur noch wenigen Pulse hoch genug sind, um registriert zu werden. Damit wird die statistische Aussage der Messung deutlich verschlechtert.

Schließlich bricht die CR ein bis alle Pulse unterhalb der Schwelle liegen. Üblicherweise stellt das zweite Minimum (in Abbildung 3.16 bei etwa  $-60 \text{ mV}$ ) das absolute Minimum der erreichbaren Zeitauflösung dar. Daher sollte in diesem Bereich der Kurve der Arbeitspunkt gewählt werden.

### Einfluss des Zero-Cross-Levels

Neben dem Abstastlevel des Signaleingangs ist das *Zero-Cross-Level* (ZC-Level) ein weiterer Parameter bei der Bestimmung des optimalen Arbeitspunktes. Dieses muss ebenso sorgfältig ermittelt werden. Beim ZC-Level handelt es sich nicht um einen detektorseitigen Parameter, sondern um einen messtechnisch bedingten Einstellwert. Durch richtige Wahl des ZC-Levels kann der durch unterschiedliche Amplitudenhöhen induzierte Jitter (Abbildung 2.11a) der Führungsflanke des Detektorpulses weitestgehend kompensiert werden.

Die Funktionsweise ist Abbildung 3.17 zu entnehmen. Der Eingangspuls des SNSPD wird zunächst auf zwei Pfade aufgespalten. Der obere Pfad führt zum sog. ZC-Diskriminator über zwei Verzögerungsleitungen (Delay 1 und Delay 2). Der negative Eingang von D1 erhält (Abbildung 3.17, links) das identische Signal wie der positive, jedoch mit geringerer Amplitude und mit einer Zeitverzögerung. Dadurch entsteht ein bipolarer Puls als Differenzspannung am Ausgang.

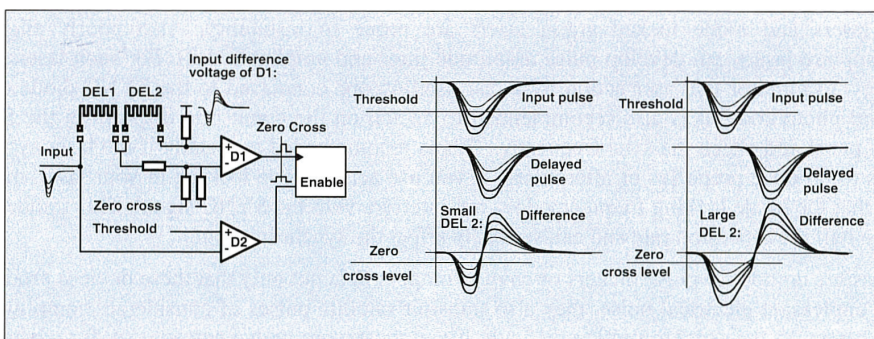


Abbildung 3.17: Schema der Zero-Crossing-Einstellungen der TCSPC-Elektronik bei unterschiedlichen Delays, [52, S. 226] entnommen.

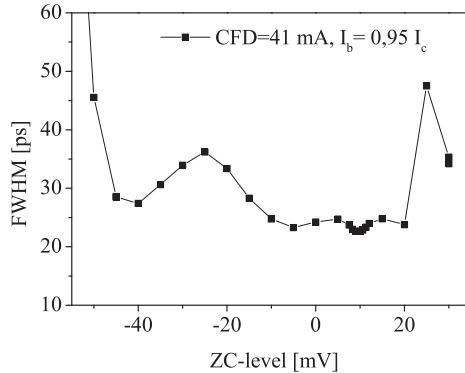


Abbildung 3.18: 3NbN281-5: Zusammenhang zwischen erreichbarer Zeitauflösung und ZC-Level.

Der Puls beginnt mit einer negativen Flanke, kreuzt den Nulldurchgang (sog. *Zero-Crossing*) und wird positiv. Die Lage dieses Nulldurchgangs ist amplitudenhöhenunabhängig. Bei richtiger Wahl des Delays (Abbildung 3.17, mitte), wird der bipolare Puls so geformt, dass sich das ZC-Level bei einigen mV (um 0 mV herum) korrekt einstellen lässt. Ist das Delay zwischen den Pulsen zu hoch, führt dies zu einer geringen zeitlichen Überlappung der beiden Pulse und damit zu einer ungünstigen Pulsformung (Abbildung 3.17, rechts) [52].

Im praktischen Vorgehen werden die Delays auf der eingesetzten Hardware nicht verändert. Nach Ermittlung der bisherigen Parameter wird bei einem fixem CFD-Level das ZC-Level variiert. Nach Auswertung der Histogramme und deren Halbwertsbreite kann Abbildung 3.18 erstellt werden indem die Halbwertsbreite über dem eingestellten ZC-Level aufgetragen wird. Auch hier findet sich, wie bereits im vorangegangenen Abschnitt für das CFD-level, ein absolutes Minimum. Die so gefundene Einstellung wird ebenfalls für zukünftige Messungen verwendet, damit der SNSPD optimale Ergebnisse erzielen kann. Der maximal mögliche Einstellbereich für das ZC-Level liegt zwischen -96 und +96 mV. Im Fall der eingesetzten SNSPD kann dieser Bereich jedoch im Normalfall nicht komplett genutzt werden, da die maximal von der Elektronik erkannte Amplitude bei nur einigen 10 mV liegt, siehe Abbildung 3.16.

### Zusammenhang zwischen Abtastniveau und Zero-Crossing

Wichtig für die Arbeit mit der TCSPC-Elektronik und dem SNSPD ist, dass die Einstellungen des CFD- und des ZC-Levels nicht völlig unabhängig voneinander sind. So lassen sich für jedes feste CFD-Level ZC-Kurven in der Form von Abbildung 3.17 bestimmen.

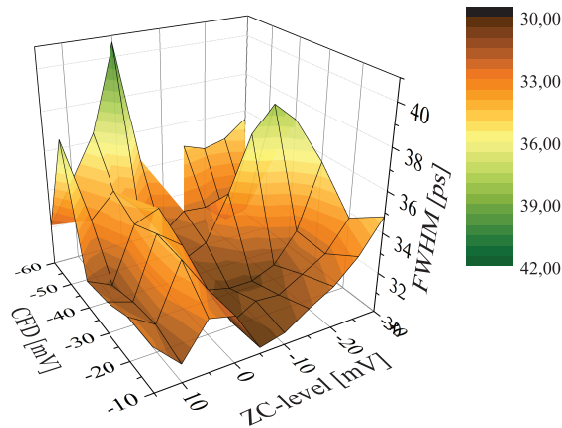


Abbildung 3.19: Dreidimensionale Darstellung der Abhängigkeiten der erreichbaren Zeitaufösungen von CFD- und ZC-Level von Chip 3NbN281-7.

Trägt man diese Kurven, wie in Abbildung 3.19 dargestellt, dreidimensional auf, so lässt sich feststellen, dass sich für jeden CFD-Wert üblicherweise zwei Minima in der Zeitauflösung finden lassen. Diese sind etwa symmetrisch um ZC-Level = 0 mV. Die hier gezeigte dreidimensionale Ansicht wurde nicht für alle SNSPD ermittelt und besaß eine andere Geometrie als SNSPD 3NbN281-5 (zwei parallele Streifen anstatt eines Einzelstreifens, siehe Abbildung 3.23, Chip Nr. 7) und dient an dieser Stelle der Veranschaulichung der vorhandenen Abhängigkeiten zwischen CFD- und ZC-Level. Es lässt sich gut ablesen wie wichtig die genaue Kenntnis dieser beiden Parameter ist, um hohe Zeitaufösungen zu erzielen.

### Einfluss von $I_b$ und $I_c$

Neben den bisher besprochenen Parametern ist der Strom, der durch den Detektor fließen kann, ein weiterer wichtiger Einflussfaktor für die Zeitauflösung. Dieser Bias-Strom  $I_b$ , der zum Einstellen des Arbeitspunktes verwendet wird, wird vom erreichbaren kritischen Strom  $I_c$  des Sensors bestimmt.

Abbildung 3.20a und 3.20b zeigen, dass sich die Zeitauflösung verbessert, wenn bei einem prozentual höheren  $I_b$  zu  $I_c$  Verhältnis gearbeitet werden kann. Dies trifft sowohl auf Variationen des CFD- als auch des ZC-Levels zu. Zudem zeigt sich neben der relativen eine Abhängigkeit von  $I_b/I_c$  ebenso eine solche von den absolut erreichbaren Werten des  $I_b$ .

Abbildung 3.20c zeigt die erreichte Zeitauflösung einer Messung des gleichen SNSPD-Chips wie für die Messungen bei unterschiedlichen  $I_b$ .

Je höher die Werte gewählt werden können, desto besser wird die zeitliche Auflösung. Dies deckt sich in erster Annäherung ebenfalls mit den Erkenntnissen von You et al. [55].



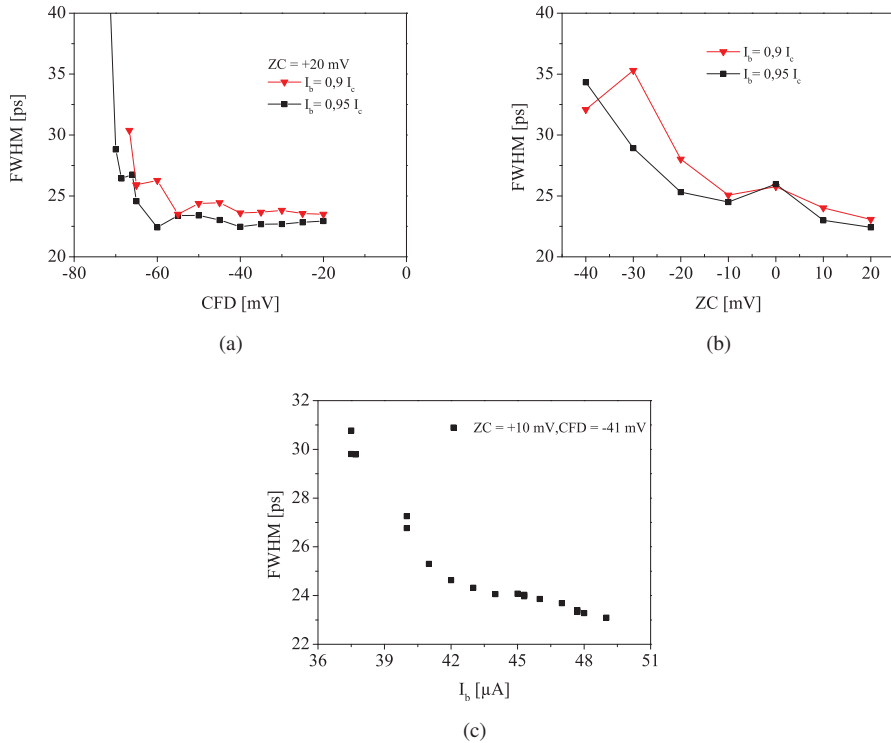


Abbildung 3.20: Darstellung der Zeitauflösung bei Variation von (a) CFD-Level und (b) ZC-Level. (c) Erreichbare Zeitauflösung bei variiertem  $I_b$ .

### 3.3.3 Untersuchung des Einflusses der kinetischen Induktivität auf die Zeitauflösung

Die bisher vorgestellten Ergebnisse beziehen sich überwiegend auf ein „Standard“ SNSPD-Layout, das eine aktive Fläche von etwa  $5 \times 5 \mu\text{m}$  aufweist. Anstiegs- und Abfallszeiten der SNSPD-Spannungspulse werden durch die elektrischen Eigenschaften des supraleitenden Mänders bestimmt. Diese wiederum werden durch die relativ hohe kinetische Induktivität von etwa  $1 \text{ nH}/\mu\text{m}$  [40] dominiert und skalieren mit der Streifenlänge. Da die Steilheit der Anstiegsflanke für die Festlegung des Startzeitpunktes bei der TCSPC-Messung ein maßgeblicher Faktor ist, wurden Detektoren mit unterschiedlichen  $L_{\text{kin}}$  untersucht. Durch die Reduktion der kinetischen Induktivität wurde eine Verbesserung der zeitlichen Auflösung erwartet.

## Vorgaben für die Detektorfertigung

Um die Anforderung der reduzierten Verstärkerzahl (Abschnitt 3.3.2) zu erfüllen wurden alle Chips mit etwas höheren Schichtdicken als für möglichst hohe DE gefertigt. Chip Nr. 3NbN281 (Abbildung 3.21), der unterschiedliche Induktivitäten unter Beibehaltung der identischen aktiven Fläche wie beim „Standard“-Design durch abschnittsweise Parallelschaltung erreicht, besitzt eine Schichtdicke von 7,5 nm. Zudem wurde ein weiteres Chipdesign untersucht. Chip Nr. 647 (Abbildung 3.22) besteht nur aus geraden Streifen und besitzt eine Schichtdicke von 6,3 nm. Hierdurch ist zu erwarten, dass Geometrieinflüsse stark reduziert werden. Einer der Geometrieeffekte kann beispielsweise durch *current-crowding* (Stromüberhöhung) bei dünnen supraleitenden Schichtleitern an den Wendepunkten der Mäander zu einer Reduktion von  $I_c$  führen.

Von Hagedorn und Hall wurde bereits in den 1960er Jahren eine grundlegende theoretische Arbeit zu diesem Effekt vorgestellt [97], wobei hier keine Supraleitung berücksichtigt wurde. Deutlich später wurde diese durch Clem et al. auf  $180^\circ$  Wendungen, wie sie in SNSPD-Mäandern auftreten, erweitert [98] und die Supraleitung mit betrachtet. In der Dissertationsschrift von D. Henrich [24] findet sich eine ausführliche Untersuchung dieses Effektes auf supraleitende NbN-Dünnschichten mit ähnlichen Dimensionen wie denen eines SNSPD. So konnte festgestellt werden, dass die rein durch Steigerung des Winkels verursachte Reduktion der kritischen Stromdichte  $J_c$  bereits bei einem  $90^\circ$  Winkel bei etwa 60% im Vergleich zu einem geraden Streifen beträgt. Der Effekt wird reduziert, wenn die Richtungsänderung nicht als scharfer Knick, sondern mit einem gewissen Radius ausgeführt wird.

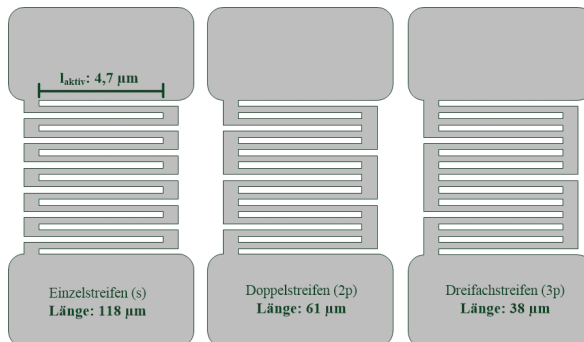


Abbildung 3.21: Vorgaben für das SNSPD Mäander-Design mit variiertem  $L_{\text{kin}}$ . Die 2-fach und 3-fach Parallelstreifen dienen zur Reduktion von  $L_{\text{kin}}$  unter Beibehaltung der Fläche. Der Füllfaktor beträgt auch hier 50 %.

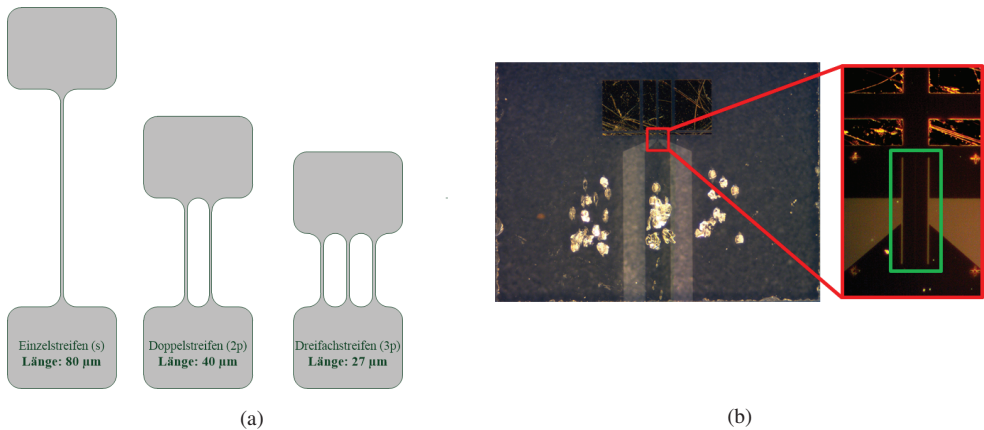


Abbildung 3.22: (a) Vorgaben für das SNSPD Streifen-Design. Bei den 2- und 3-fach parallelen Streifen beträgt der Abstand  $500\ \mu\text{m}$ . (b) zeigt eine Mikroskopaufnahme eines gefertigten Einzelstreifen-Chips als. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt den Detektorbereich.

### Charakteristische Daten von SNSPD mit unterschiedlichen $L_{\text{kin}}$

In diesem Abschnitt finden sich sämtliche Daten der DC-Charakterisierung<sup>1</sup> der in dieser Arbeit untersuchten SNSPD. Die Chips Nr. 3NbN281 und 3NbN647 unterscheiden sich vor allem durch das Layout. Für die Designs wurde eine Gesamtlänge des SNSPD so gewählt, dass  $L_{\text{kin}}$  bei den Einzelstreifen (*singlewire*, Kürzel „s“), Doppelstreifen (*doublewire*, Kürzel „2p“) und Dreifachstreifen (*triplewire*, Kürzel „3p“) ähnlich sind.

Unter Annahme eines Skalierungsfaktors von  $1\text{ nH}/\mu\text{m}$  für  $L_{\text{kin}}$  ergeben sich die in nachfolgender Tabelle 3.2 zusammengestellten Daten für die beiden untersuchten Chips.

Die Unterschiede in der Berechnung der Gesamtinduktivität der beiden Chips liegen vor allem darin begründet, dass bei Chip Nr. 3NbN281 eine Reihenschaltung von parallel geschalteten Teilabschnitten erfolgt. Alleine hierdurch reduziert sich die Induktivität bereits um den Faktor 2 (2p) bzw. 3 (3p). Zudem wird die Gesamtlänge durch das Konstanthalten der aktiven Fläche die Länge um etwa den Faktor 2 (2p) bzw. 3 reduziert.

Hierdurch ergibt sich der Multiplikator  $1/4 L_0$  bei der 2p Struktur des Mäanders sowie die  $1/9 L_0$  bei der 3p Struktur. Dargestellt ist der Ausschnitt einer REM-Aufnahme der unterschiedlichen Mäander-SNSPD von Chip Nr. 3NbN281 in Abbildung 3.23. Um die gleichen Skalierungsfaktoren auch bei den Streifendesigns anzuwenden, wurden hier die Längen der Streifen äquivalent verkürzt. Eine Detailaufnahme der aktiven Bereiche von Chip Nr. 3NbN647 findet sich in Abbildung 3.24. Die weißen Flächen in der linken Abbildung, welche zur Positionierung des Chips dienen, besitzen eine vertikale Länge von  $80\ \mu\text{m}$ .

<sup>1</sup> DC steht in diesem Zusammenhang für *Direct Current* bzw. im Deutschen Gleichstrom.

Tabelle 3.2: Eigenschaften der Einzel-, Doppel- und Dreifach-SNSPD von Chip 3NbN281 und 3NbN647.

Chip-Nr.	Kürzel	Länge [ $\mu\text{m}$ ]	Induktivität [nH]	Layout
3NbN281	s	118	$L_{\text{kin}} \approx L_0 \approx 118$	Mäander
	2p	61	$L_{\text{kin}} \approx L_0/4 \approx 30,5$	Mäander
	3p	38	$L_{\text{kin}} \approx L_0/9 \approx 13$	Mäander
3NbN647	s	80	$L_{\text{kin}} = L_0 \approx 80$	Streifen
	2p	40	$L_{\text{kin}} = L_0 / 4 \approx 20$	Streifen
	3p	27	$L_{\text{kin}} = L_0 / 9 \approx 9$	Streifen

Abbildungen 3.25 und 3.26 stellen die wichtigsten Eckdaten der beiden Chipdesigns grafisch dar. In den linken Abbildung (a) ist gut der Unterschied zwischen den s, 2p und 3p Varianten zu erkennen. Auf der rechten Seite (b) finden sich jeweils der Widerstandswert bei 25 K ( $R_{25}$ ) und der erreichbare kritische Strom bei 4 K.

Gut zu erkennen ist, dass sich bei beiden Designvarianten ein ähnliches Verhalten zeigt und gleiche Chips jeweils nahezu identische Eigenschaften aufweisen. Dies spricht für eine gut reproduzierbare Herstellung mit wenigen herstellungsbedingten Abweichungen. Bei der s-Variante findet sich insbesondere bei den RT-Kennlinien jedoch eine stärkere Abweichung der Konformität. Chip 3NbN281-5 und Chip 3NbN647-1 weisen den geringsten normalleitenden Widerstandswert auf. Dies wiederum korreliert mit dem höchsten Wert für den kritischen Strom im Vergleich zu den identischen Layouts des gleichen Chips.

Für bessere Übersicht der Einzelwerte, wurden diese für die in dieser Arbeit gemessenen Schichten ebenfalls in Tabelle 3.3 in zusammengefasst. Zudem wurden die Daten für  $I_{c,d}$  und  $I_{c,l}$  (siehe Abschnitt 3.3.1), wie sie experimentell ermittelt wurden, ergänzt. Eine Ursache für die Unterschiede zum  $I_c$ , das direkt nach der Schichtherstellung in einem Messstab gemessen wurde, und  $I_{c,d}$ , könnte eine etwas höhere Detektortemperatur im TCSPC-Messsystem sein.

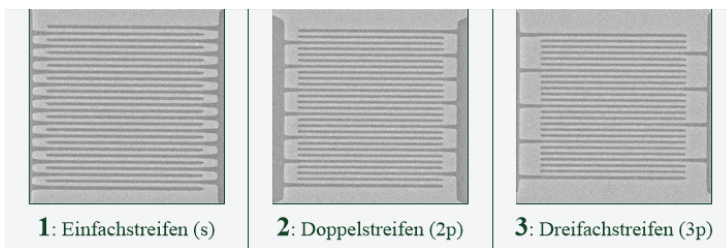


Abbildung 3.23: Chip Nr. 3NbN281: Ausschnitte von REM Aufnahmen der aktiven SNSPD Bereiche der unterschiedlichen Layouts.

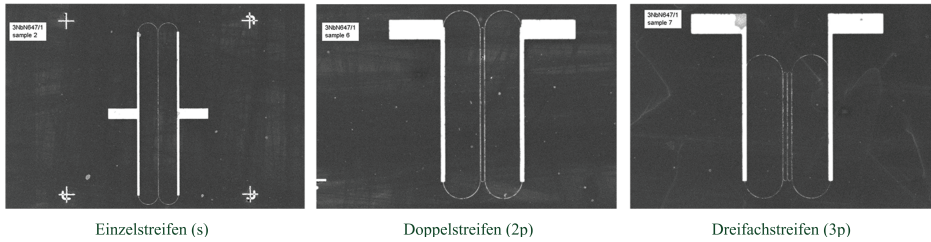


Abbildung 3.24: Chip Nr. 3NbN647: Ausschnitte von REM-Aufnahmen der aktiven SNSPD-Bereiche der unterschiedlichen Layouts.

Der Detektor ist direkt gegenüber der Mikrofokusoptik positioniert, welche auf Raumtemperatur gehalten wird (Abschnitt 3.1.2). Dadurch kann die Wärmestrahlung zu einer Temperaturerhöhung des Detektors führen.

$I_{c,d}$  beschreibt den erreichbaren kritischen Strom bei Dunkelheit bzw. ohne Lichteinstrahlung,  $I_{c,l}$  den erreichbaren kritischen Strom bei Licht auf dem Detektor. Aus den Daten lassen sich einige wichtige Fakten entnehmen. Zum Einen sieht man, dass sich die Werte von  $I_c$  und  $I_{c,d}$  zwischen Charakterisierungsmessungen am KIT von denen im Experiment am IPHT erzielten Werten deutlich unterscheiden. Eine mögliche Erklärung könnte die unterschiedliche Kühlung in beiden Systemen sein. Während die Messung am KIT in einem Messstab direkt in der Heliumkammer stattfindet, wird die Messung am IPHT in einem Kryostaten durchgeführt. Die Kühlung des Chips erfolgt hierbei nur über Wärmeleitung des Substrates, wobei auf sehr gute thermische Ankopplung des Sensors geachtet wurde (Abschnitt 3.1.4). Zum anderen fällt die Reduktion von  $I_{c,d}$  und  $I_{c,l}$  auf, welche bei Bestrahlung des Sensors auftritt. Dieser Effekt tritt auch auf, wenn sicher gestellt ist, dass die Einstrahlung im Einzelphotonenbereich liegt. Je mehr Streifen parallel geschaltet werden, desto stärker ist die Reduktion von  $I_{c,l}$ .

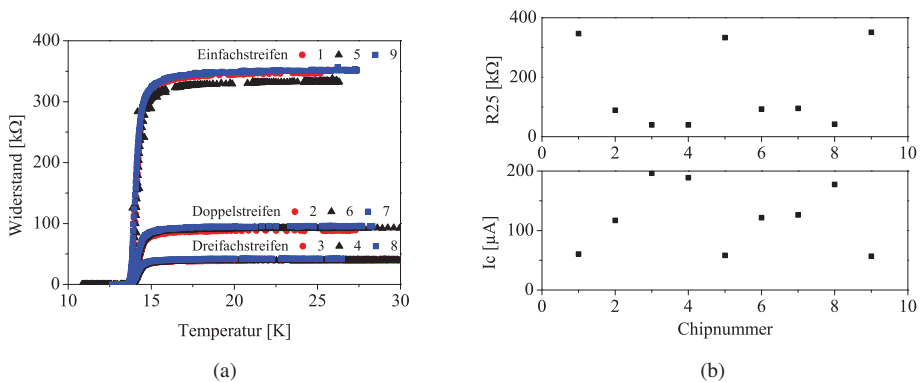


Abbildung 3.25: Eckdaten zu Chip Nr. 3NbN281: (a) zeigt die RT-Kennlinien für die unterschiedlichen Chipvarianten, (b) zeigt im oberen Teil den Widerstand bei 25 K sowie den kritischen Strom bei 4 K.

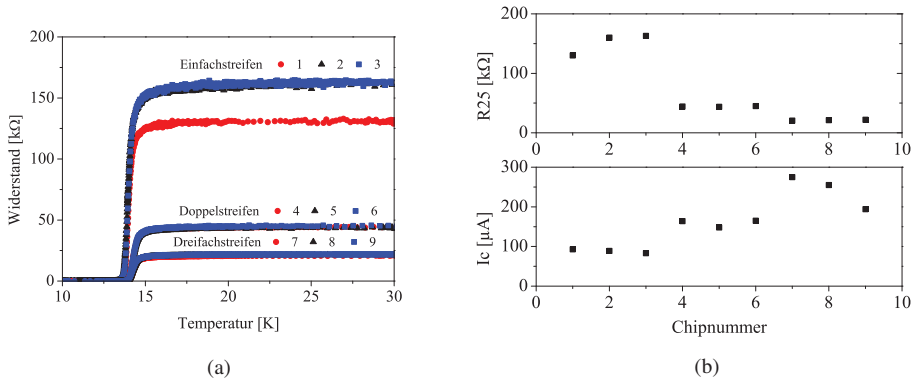


Abbildung 3.26: Eckdaten zu Chip Nr. 3NbN647: (a) zeigt die RT-Kennlinien für die unterschiedlichen Chipvarianten, (b) zeigt im oberen Teil den Widerstand bei 25 K sowie den kritischen Strom bei 4 K.

Tabelle 3.3:  $R_{25\text{ K}}$  und  $I_c$  von Chip 3NbN281 und Chip 3NbN647 im Vergleich.  $I_c$  ist der für die Schichten direkt nach der Herstellung ermittelte Wert,  $I_{c,d}$  und  $I_{c,l}$  sind der erreichbare kritische Strom im TCSPC-Messsystem.

Chip-Nr.	Layout	Nr.	Typ	$R_{25}$ [kΩ]	$I_c$ [μA]	$I_{c,d}$ [μA]	$I_{c,l}$ [μA]
3NbN281	Mäander	5	s	333	59,1	50,3	49,4
		7	2p	95	126	108	71
		4	3p	39	187	122	107,9
3NbN647	Streifen	1	s	130	93	89,4	89,4
		4	2p	44,2	164	143	115,7
		7	3p	20,6	275	220	172

### Zeitaufösungen bei Mäandergeometrie mit unterschiedlichen $L_{kin}$ bei konstanter aktiver Fläche

Nachdem in Abschnitt 3.3.2 bereits die grundlegenden Einflüsse der TCSPC und detektorintrinsischen Parameter auf die Zeitauflösung vorgestellt wurden, soll an dieser Stelle zunächst Chip 3NbN281 untersucht werden. Hier wurde die aktive Fläche im Vergleich zu einem Einzelstreifenchip identisch belassen und die kinetische Induktivität durch Parallelschaltung reduziert (Abschnitt 3.3.3). Zu erwähnen ist, dass die angegebenen Werte für die erreichte Halbwertsbreite sich auch hier immer auf die IRF beziehen. Der Detektor selbst trägt nur einen Teil zur IRF bei. Der maximale SNSPD-Anteil kann mittels Gleichung 3.3 (S. 42) abgeschätzt werden. In Abbildung 3.27 ist die Abhängigkeit zwischen dem CFD-Level und der Zeitauflösung der drei unterschiedlichen Designs (Abbildung 3.21) dargestellt. Abbildungen 3.27a und 3.27b belegen, dass bei einem höheren Verhältnis von Biasstrom zu kritischem Strom die Zeitauflösung grundsätzlich verbessert wird.

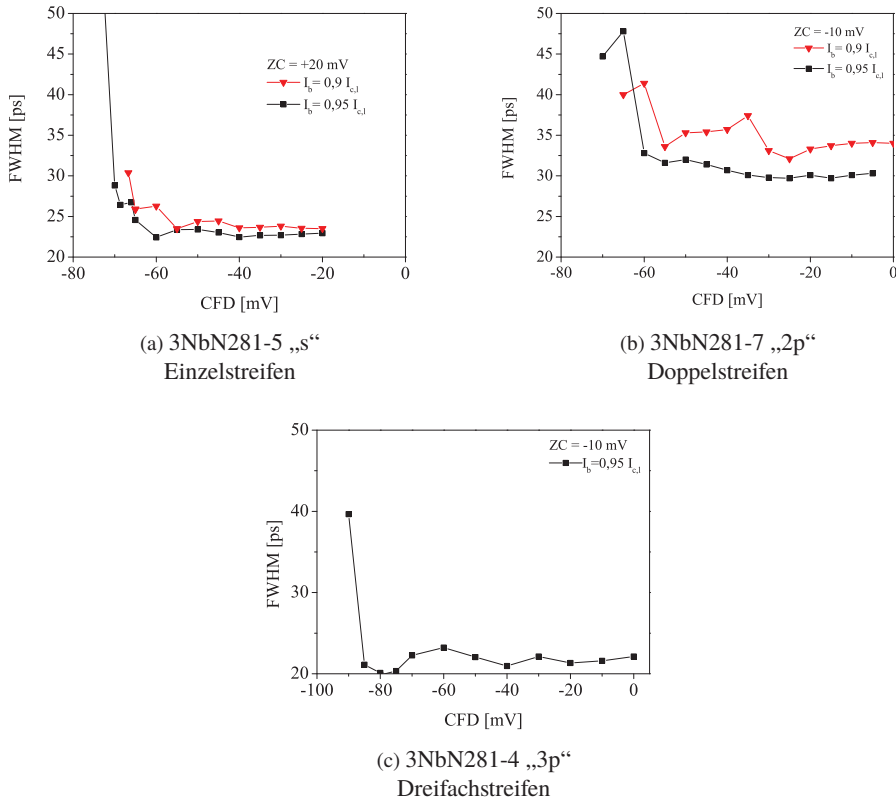
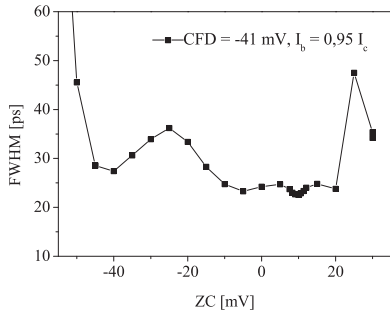


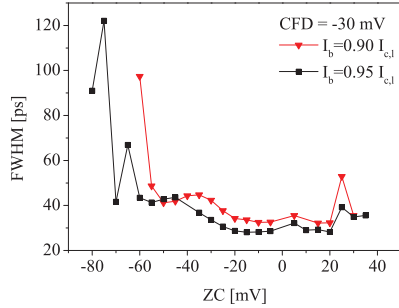
Abbildung 3.27: Vergleich des Einflusses des CFD-levels auf die erreichbaren Zeitauflösung bei konstanter Detektionsfläche, jedoch unterschiedlichem  $L_{kin}$ .

Zu erkennen ist ebenso der bereits in Abschnitt 3.3.2 beschriebene Verlauf. Bei Erreichen der maximal möglichen Amplitude (betragsmäßig) verschlechtert sich die Zeitauflösung zusehends, unabhängig vom Design.

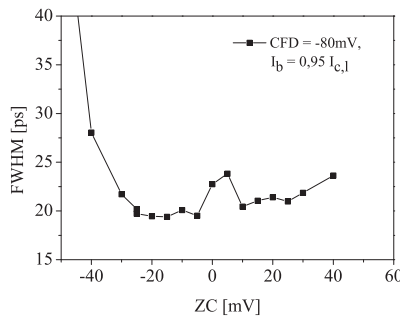
Elektronikseitig werden alle Pulse, deren Amplitude betragsmäßig kleiner als das CFD-Level sind, nicht für die Erstellung der IRF-Histogramme verwendet und verworfen. Hierdurch tragen bei Erhöhung des CFD-Levels immer weniger Pulse zur IRF bei, die effektive CR sinkt. Die Kurven weisen ein deutlich stärkeres Rauschen auf, was auch den Anstieg des FWHM-Wertes erklärt. Die Konfiguration der Auslese bei den Messungen war bei allen drei Chiptypen identisch (gleiche Kabelkonfiguration, zwei Raumtemperaturverstärker). Bei nun bekannter CFD-Charakteristik, konnte ebenfalls die Abhängigkeit zwischen ZC-Level und der erreichbaren Zeitauflösung bei optimalen CFD-Einstellungen ermittelt werden. Abbildung 3.28 zeigt die ZC-FWHM-Diagramme der drei unterschiedlichen SNSPD-Designs.



(a) 3NbN281-5 „s“ Einzelstreifen



(b) 3NbN281-7 „2p“ Doppelstreifen



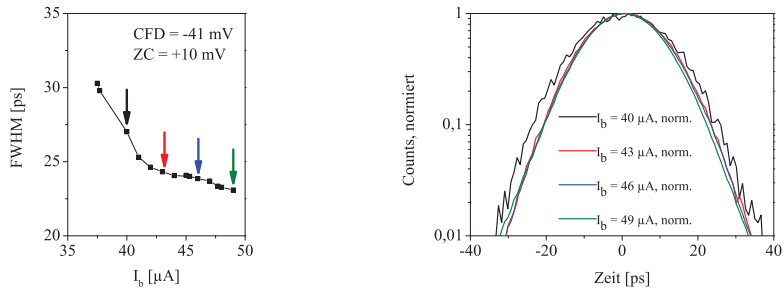
(c) 3NbN281-4 „3p“ Dreifachstreifen

Abbildung 3.28: Vergleich des Einflusses des ZC-Level auf die erreichbaren Zeitauflösung bei konstanter Detektionsfläche, jedoch unterschiedlichem  $L_{kin}$ .

Die Diagramme weisen alle zwei Minima um  $ZC = 0$  mV auf (siehe Abschnitt 3.3.2). Der maximale Einstellbereich von  $\pm 96$  mV wurde nicht komplett ausgeschöpft, da die CR (besonders im positiven Bereich des ZC-Level) stark abfiel und dadurch keine zuverlässige Histogrammbildung mehr möglich war. Die Ursache hierfür liegt wahrscheinlich an der internen Pulsverarbeitung der TCSPC-Elektronik .

Durch die Verwendung der im Vorfeld ermittelten optimalen CFD- und ZC-Parameter kann die Abhängigkeit der zeitlichen Auflösung von  $I_b$  zuverlässig bestimmt werden. Abbildungen 3.29, 3.30 und 3.31 zeigen jeweils in den Abbildungen (a) die erreichbare Zeitauflösung über  $I_b$  und (b) die zugehörigen Histogramme. Die Farben der Pfeile in Abbildung (a) entsprechen den Farben der zugehörigen Histogrammkurven in Abbildung (b). Zur besseren Vergleichbarkeit wurden die Histogramme normiert.

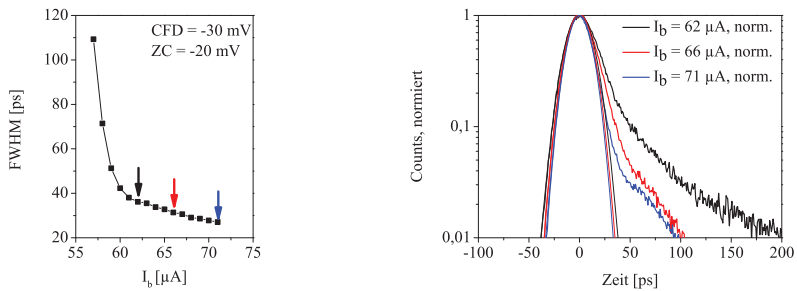




(a) Abhängigkeit der Zeitauflösung von  $I_b$

(b) Histogramme

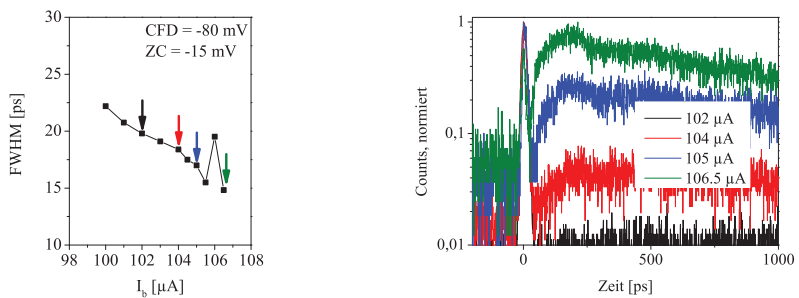
Abbildung 3.29: 3NbN281-5 „s“ Einzelstreifen.



(a) Abhängigkeit der Zeitauflösung von  $I_b$

(b) Histogramme

Abbildung 3.30: 3NbN281-7 „2p“ Doppelstreifen.



(a) Abhängigkeit der Zeitauflösung von  $I_b$

(b) Histogramme

Abbildung 3.31: 3NbN281-4 „3p“ Dreifachstreifen.

Vergleicht man die jeweils identischen Diagramme von FWHM über  $I_b$  untereinander, so kann festgestellt werden, dass der generelle Verlauf ähnlich ist. Bei zunehmend höherem  $I_b$  wird die Zeitauflösung verbessert, die erreichte Halbwertsbreite nimmt ab. Die erreichten Zeitaufösungen der IRF liegen minimal bei etwa 23 ps für die „s“- , 27 ps für die „2p“- und knapp 15 ps „3p“-Variante.

Sieht man sich die zugehörigen Histogramme jedoch dazu an, wird schnell erkennbar, dass die IRF bereits bei der „2p“-Variante von einer Gaussfunktion abweicht. In Abbildung 3.30b wurden die Fitfunktionen, mit denen die Halbwertsbreiten der IRF bestimmt wurden, als dünne Linien ebenfalls eingezeichnet. Die zeitlich später erfolgenden Ereignisse, die zu der Verzerrung der IRF beitragen, wurden dementsprechend nicht berücksichtigt. Noch extremer wird die Veränderung der IRF beim Zuschalten eines dritten parallelgeschalteten Streifens. Das Histogramm zeigt hier schon für relativ niedrige  $I_b$  ein deutlich verstärktes Rauschen nach dem Hauptpeak um  $t=0$  ps. Die Veränderung der IRF ist so massiv, dass der Hauptpeak um  $t=0$  ps zu einem Nebenmaximum wird.

Die relativ guten IRF-Werte aus der FWHM- $I_b$ -Kennlinie erklären sich dadurch, dass die Kurven manuell auf diesen ersten Peak um  $t=0$  ps angepasst wurden. Dies wiederum bedeutet, dass die bei höherem  $I_b$  sich das Verhältnis zwischen den durch den Gaussfit erfassten Daten und den in der Messung enthaltenen Daten sich stark verändert. Je höher  $I_b$ , desto weniger reale Messpunkte werden durch den Gaussfit erfasst. Natürlich werden diese Abweichungen von der Gaussfunktion auch durch die logarithmische Darstellung der Histogramme stark hervorgehoben. Da die IRF jedoch ausschlaggebend für die Qualität bzw. die Rückrechnung auf den originalen Verlauf der Messdaten ist, kann das Dominieren von Störeffekten für einen realen Einsatz als Sensor nicht akzeptiert werden.

Dazu kommt, dass speziell im Falle der „3p“-Variante eine starke Reduktion von  $I_{c,d}$  zu  $I_{c,l}$  zu beobachten ist. Bei Einzelstreifengeometrien ist solche eine Reduktion kaum bemerkbar, sodass üblicherweise  $I_c \approx I_{c,d}$  und damit ein Arbeitspunkt  $I_b = 0,95 I_c \approx 0,95 I_{c,d}$  gewählt werden kann. Damit befindet sich der Detektor im Bereich seiner höchsten Effizienz.

Im Falle von Parallelgeometrien ist dies durch die beschriebene Reduktion nicht mehr möglich, da  $I_{c,l} < I_{c,d}$ . Dadurch werden bei angenommener gleicher Beleuchtungsstärke niedrigere CR erreicht, was eine Reduktion der DE bedeutet. Eine hohe DE ist jedoch ebenfalls ein wichtiger Parameter für den Einsatz des Detektors in verschiedenen Applikationen.

In der Literatur finden sich nur bedingt Erklärungsansätze für das beobachtete Verhalten. Einige Publikationen beschreiben sog. *Afterpulsing*-Phänomene [99–102]. Hierzu muss zunächst der Begriff des *Afterpulsings* bzw. des Nachpulsens klar definiert werden. Die Begrifflichkeit stammt aus dem Bereich der Photomultiplier, die lange Zeit überwiegend für die Detektion von Einzelphotonen eingesetzt wurden. Konkret handelt es sich dort um detektierte Pulse, die zeitlich nach der Detektion des zu messenden Signals stattfinden und demnach nicht direkt durch ein Photoelektron des Messsignals ausgelöst wurden. Phänomenologisch werden zwei Ursachen mit unterschiedlichen Zeitkonstanten, in dem sich diese Nachpulse ausgelöst werden, unterteilt. Nachpulse mit kurzen Verzögerungszeiten (wenige ns) werden durch elastische Streuung von Elektronen auf der ersten Dynode des Photomultipliers

verursacht; Nachpulse mit längeren Zeitkonstanten (einige hundert ns - ms) hingegen durch positiv geladene Ionen im Restgas, die auf der Photokathode eine Elektronenlawine erzeugen (sog. Ionenfeedback) [103, S. 77 ff.]. Ähnliche Effekte werden auch im Zusammenhang mit anderen, auf Lawineneffekt beruhenden Detektoren, beschrieben. Beides tritt in dieser Form bei SNSPD nicht auf, dennoch wird der Begriff wegen der Ähnlichkeit des beschriebenen Verhaltens verwendet.

In [99] und [100] wird der Schluss nahe gelegt, dass beobachtete Nachpulse sehr wahrscheinlich auf Reflexionen im Auslesepfad zurückzuführen sind. In beiden Publikationen wird darauf hingewiesen, dass eine Reduktion des beobachteten Phänomens durch Verwendung besser geeigneter Verstärker erreicht werden konnte. In [99] wurde festgestellt, dass hierdurch die Bitfehlerrate im vorgestellten Experiment verbessert werden konnte. Das spricht dafür, dass es sich in diesen Fällen bei den Nachpulsen nicht um ein intrinsisches Detektorphänomen handelt.

Anders kann es sich jedoch bei Konfigurationen aus Parallelstreifen, wie bei den hier vorgestellten Messungen, verhalten. In [101] und [102] wird das Schaltverhalten solcher Konfigurationen untersucht. In [101] wurden Strukturen von nur 30 nm Breite für die Messungen verwendet. Der Schwerpunkt der Publikation zielt auf eine Verbesserung der Rücksetzzeiten und des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses der SNSPD ab. Nachpulse wurden hier nur bei SNSPD mit Rücksetzzeiten von unter 1 ns beobachtet. Zusammengefasst kommen die Autoren zu dem Schluss, dass wenn elektrische und thermische Relaxation zeitlich in einen ähnlichen Bereich liegen, Fehlfunktionen durch sog. *Latching*<sup>2</sup> oder Nachpulse auftreten können. Was in der Publikation von Marsili et al. offen bleibt, ist eine Auswertung als Histogramm durch eine TCSPC-Messung. Diese könnte Aufschluss auf die absolute Häufigkeit und das zeitliche Verhalten der auftretenden Nachpulse geben. Zudem ist auch nicht klar, ob es sich hierbei tatsächlich um Nachpulse im klassischen Sinne handelt, da die Autoren bei der Entstehung von Nachpulsen nur von einer *Hot-Spot Nucleation* (HSN) ausgehen- unabhängig von der Ursache. Allerdings sollten alle counts, die durch DC entstehen, unkorreliert sein und nur das Rauschlevel anheben. Auch hierfür wäre nur die Messung eines Histogramms aussagekräftig.

Besonders interessant bei der Betrachtung von Nachpulsen ist [102]. Die dort untersuchten Strukturen entsprechen mit 100 nm Breite den in dieser Arbeit verwendeten. Zudem wird ein Vergleich zwischen einem Standard-Mäander und der parallelgeschalteten Variante (5-fach-Streifen) durchgeführt. Beide Designs wurden auf dem gleichen Chip realisiert. Der maximal verwendete Bias-Strom  $I_b$  liegt bei knapp 99,6% von  $I_c$ . Laut den Autoren ist  $5 \cdot I_{c,s} = I_{c,5p}$ <sup>3</sup>, was bedeuten würde, dass es keinerlei herstellungsbedingte Abweichungen bei der Strukturierung der Mäander gibt. Die Autoren beschreiben ebenfalls nicht die in dieser Arbeit beschriebene Reduktion von  $I_c$  durch den Einfall von Photonen auf den Sensor. Neben diesen Unterschieden zeigt die Publikation dennoch an einigen Stellen

<sup>2</sup> *Latching*, zu deutsch: einrasten, einklinken. Gemeint ist hier, dass der SNSPD nach der Detektion eines Photons nicht mehr in den supraleitenden Zustand zurückkehrt, sondern in der Normalleitung verbleibt [94].

<sup>3</sup>  $I_{c,s}$  = kritischer Strom des Einzelstreifens,  $I_{c,5p}$  = kritischer Strom des 5-fach parallel geschalteten Streifens.

gute Übereinstimmung mit den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen der Histogramme aus Abbildung 3.30b und 3.31b. Auch dort kann bereits für deutlich niedrigere  $I_b$  eine Asymmetrie sowie eine Art Schweifbildung bei Histogrammen beobachtet werden. Die erreichten Zeitaufösungen liegen jedoch aufgrund des eingesetzten Messaufbaus (Anregung mit 60 ps breiten Lichtpulsen und FWHM bei 277 ps) in einer anderen Größenordnung. Die Parallelstreifen-Konfiguration weist eine etwa um den Faktor 1,5 erhöhte Halbwertsbreite im Vergleich zum *On-Chip* Standard-Mäander auf.

Die Autoren führen dies auf das kaskadenartige Schalten nach Photonenabsorption und der damit einhergehenden Unterdrückung des Ordnungsparameters zurück. Es mache einen Unterschied, ob in der Parallelkonfiguration der Streifen mit dem niedrigsten  $I_c$  in der Parallelschaltung als erstes in die Normalleitung gehe und der Strom in die übrigen Mäander zunächst umverteilt wird oder einer der anderen Streifen. Problematisch an dieser Argumentation ist, dass  $I_c$  der einzelnen parallel geschalteten Streifen alleine durch den Herstellungsprozess bereits von Streifen zu Streifen variiert. Davon auszugehen, dass ein Streifen geringer und alle anderen ein höheres  $I_c$  erreichen, ist demnach nur bedingt richtig. Vielmehr ist es so, dass die Stromumverteilung und damit auch die Reaktion an der Auslese sich unterscheiden wird, je nachdem welcher der Streifen absorbiert und wie die Reihenfolge der weiteren Prozesse beim Übergang in die Normalleitung aussieht. Somit wird das Histogramm ein Zusammenspiel dieser rein rechnerisch  $N-1$  (wobei  $N$  die Anzahl der parallelen Streifen darstellt) möglichen Umschaltvorgänge darstellen. Hinzu kommt, dass sich - je nach Zeitkonstanten - die statistische Natur dieser Prozesse zu Variationen führen können. Das zeitliche Verhalten des nacheinander Schaltens decke sich laut Simulationsrechnungen mit dem zeitlichen Abstand zu den photoneninduzierten Ereignissen. Die Relaxationszeit der Energielücke  $\Delta\tau$  nach Ginzburg-Landau wird durch einen Fit mit 2 Gausspulsen bestimmt; der Wert liegt bei etwa 400 ps. Bei unseren Messungen wäre diese Zeit jedoch erheblich kürzer, etwa um den Faktor 10. Woher dieser Unterschied kommt, ist unklar. Mögliche Ursachen wären die deutlich schlechtere zeitliche Auflösung des in der Publikation eingesetzten Messaufbaus sowie andere Materialparameter für die NbN-Schichten. Die Autoren bemerkten jedoch, dass je näher die unterschiedlichen kritischen Ströme beieinander liegen, sich die Kaskadendauer verringere. In unserem Falle könnte man unter Berücksichtigung dieser Erklärung von sehr guter Konformität der Mäander ausgehen und eventuell den geringen zeitlichen Abstand damit erklären.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Verringerung der kinetischen Induktivität, in diesem Fall durch Parallelschaltung der Streifen, nur bedingt zu einer Verbesserung der Zeitauflösung führt. Die Zeitauflösung wird zwar marginal höher, der Verlauf der IRF wird jedoch so stark verändert, dass sie in einem realen Messsystem nicht mehr sinnvoll eingesetzt werden kann.

### Zeitaufösungen bei unterschiedlichen $L_{\text{kin}}$ und Streifengeometrie

Um Geometrieinflüsse bei den Untersuchungen auf ein Minimum zu reduzieren, wurde ein weiteres Design aus geraden Streifen, ebenfalls in „s“, „2p“ und „3p“-Variante entwickelt (Abschnitt 3.3.3 ff.). Wie bei Chip 3NbN281 wurden bei Chip 3NbN647 sowohl der Einfluss des CFD- als auch ZC-Level untersucht, um den idealen Arbeitspunkt festlegen zu können. Da sich in allen Fällen ein möglichst hohes  $I_b/I_c$ -Verhältnis positiv auf die Zeitauflösung auswirkte, wurden alle Messungen bei  $I_b = 0,95 I_{c,l}$  durchgeführt.

In Abbildung 3.32 ist die Abhängigkeit zwischen dem CFD-Level und der Zeitauflösung der drei unterschiedlichen Designs dargestellt. Der Verlauf des Einzelstreifens in Abbildung 3.32a ähnelt dem in Abschnitt 3.3.2 beschriebenen dem Einzelstreifen („s“-Variante) von Chip 3NbN281 (Abbildung 3.27a). Die Verläufe der „2p“- und „3p“-Variante in Abbildungen 3.32b und 3.32c zeigen jedoch ein etwas anderes Verhalten. Für beide lassen sich Minima finden, die als Arbeitspunkte für weitere Messungen verwendet werden können.

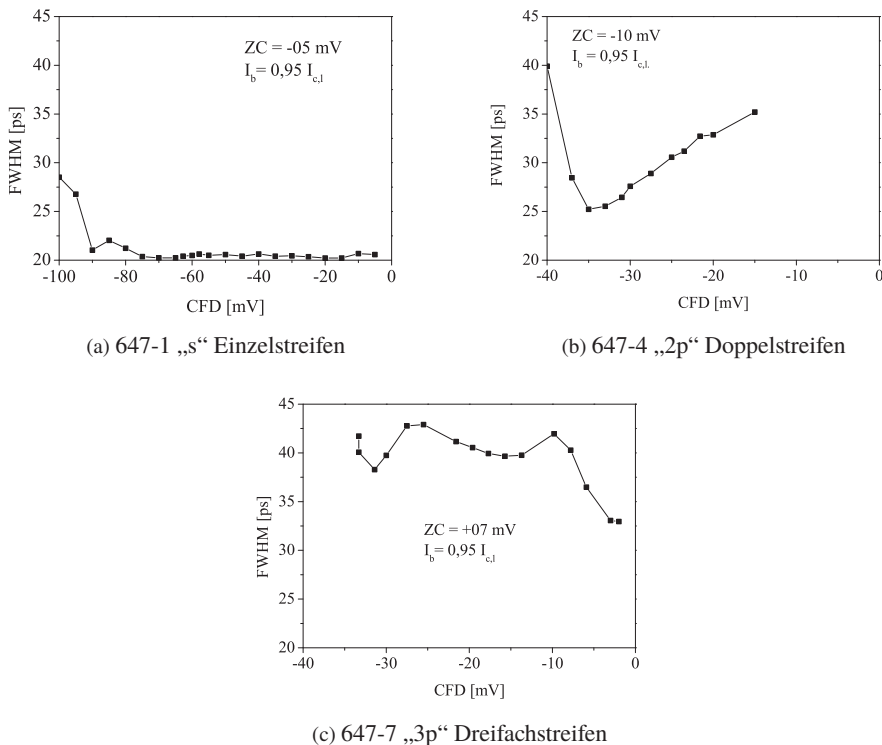
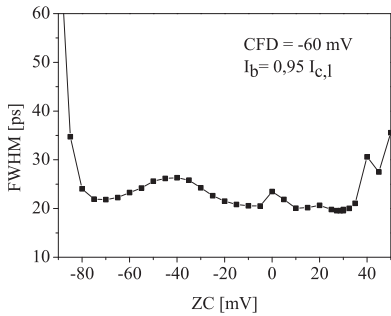


Abbildung 3.32: Vergleich des Einflusses des CFD-Level auf die erreichbare Zeitauflösung bei Streifengeometrie.

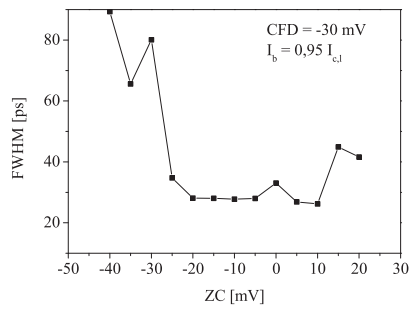
Bei allen Chiptypen wird bei sehr hohen Amplituden die zeitliche Auflösung schlechter. Die Konfiguration der Auslese war bei den Messungen identisch (gleiche Kabelkonfiguration, 2 Raumtemperaturverstärker).

Auf den ersten Blick ist zu erwarten, dass das maximale einstellbare CFD-Level (betragsmäßig) höher wird oder zumindest, wie bei Chip 3NbN281-1, auf ähnlichem Niveau bleibt. Es zeigt sich jedoch, dass der verwendbare Bereich in dem die TCSPC-Elektronik Counts registriert, sogar kleiner wird. Eine Erklärung ist die verringerte Induktivität der parallel geschalteten Streifen. Die SNSPD-Pulse werden so deutlich schmaler. Die Messelektronik benötigt jedoch durch die interne Bandbreitenbegrenzung eine Mindestbreite von 400 ps. Es kann der vermeintliche Vorteil der steileren Pulsflanken nur bedingt ausgenutzt werden.

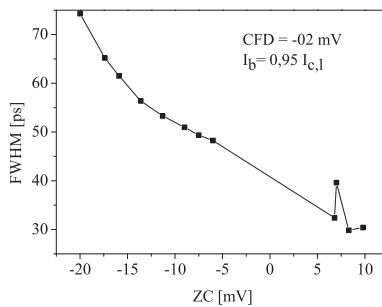
Mit bekannter CFD-Charakteristik konnte die Abhängigkeit zwischen ZC-Level und der erreichbaren Zeitauflösung ermittelt werden. Abbildung 3.33 zeigt die ZC-FWHM-Diagramme der drei unterschiedlichen SNSPD-Designs.



(a) 647-1 „s“ Einzelstreifen



(b) 647-4 „2p“ Doppelstreifen

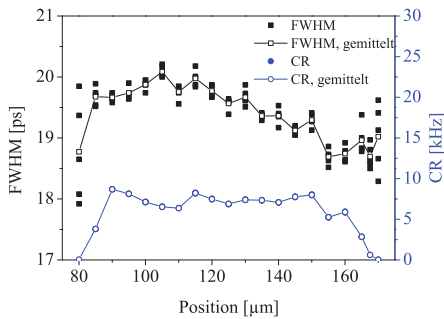


(c) 647-7 „3p“ Dreifachstreifen

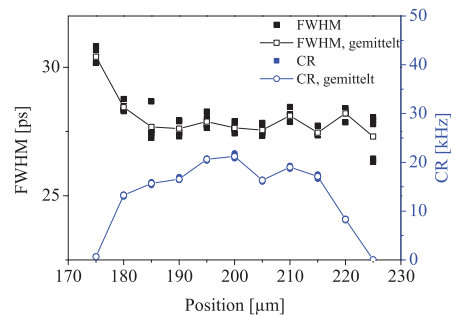
Abbildung 3.33: Vergleich des Einflusses des ZC-Levels auf die erreichbaren Zeitauflösung bei drei Streifengeometrie,  $I_b = 0,95 I_c$ .

Abbildungen 3.33a und 3.33b weisen, wie in Abschnitt 3.3.2 beschrieben, das Minimum um  $ZC = 0$  mV auf, während der Verlauf von Abbildung 3.33c in dieser Hinsicht atypisch verläuft. Ein Grund könnte hierbei das extrem niedrig gewählte CFD-Level sein, welches jedoch die besten Ergebnisse für die Zeitauflösung lieferte. Im Bereich von  $ZC = 0$  mV wurden keine Messungen durchgeführt.

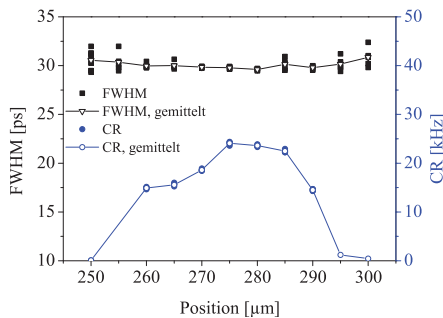
Durch das gerade Design des SNSPD war es ebenfalls möglich, die positionsabhängige Zeitauflösung und damit den Einfluss der kinetischen Induktivität auf die internen Laufzeiten genauer zu betrachten. Hierzu wurde die Position des Fokuspunktes entlang des Streifens verändert. In Abbildung 3.34 sind die erreichten Zeitauflösungen sowie die zugehörigen CR über der relativen Position entlang des SNSPD dargestellt.



(a) 647-1 „s“ Einzelstreifen  
CFD = -60 mV ,  $ZC = +28,7$  mV



(b) 647-4 „2p“ Doppelstreifen  
CFD = -30 mV ,  $ZC = -10$  mV



(c) 647-7 „3p“ Dreifachstreifen  
CFD = -2 mV ,  $ZC = -9,8$  mV

Abbildung 3.34: Vergleich der Zeitauflösung bei unterschiedlichen Positionen entlang des Streifens bei s, 2p und 3p Streifengeometrie (siehe Abb.3.24).

Tabelle 3.4: Verwendete Messparameter für Positionsvariation von Chip 3NbN647, Streifen-Design.

Chip-Nr.	Nr.	Typ	CFD [mV]	ZC [mV]	I <sub>b</sub> [μA]	P <sub>opt</sub> [pW]
3NbN647	1	s	-60	+28,7	84,9	<12
	4	2p	-30	-10	110	<7
	7	3p	-2	-9,8	163	<10

An jeder Position wurden fünf Messungen durchgeführt (schwarze Quadrate). Die ungefüllten Quadrate stellen den Mittelwert der berechneten Halbwertsbreiten dar. Zudem wurde die CR jeweils auf der rechten y-Achse aufgetragen. Hier gilt eine ähnliche Nomenklatur: die gefüllten Punkte repräsentieren die Messdaten, die ungefüllten die Mittelung.

Die CR war während der Messungen nahezu konstant weswegen die ungefüllten Punkte die Messdaten größtenteils überdecken. Bei Veränderung der Position entlang des Streifens wurden alle Einstellungen des Systems konstant gehalten. Die verwendeten Messparameter finden sich in Tabelle 3.4.

Da beim Mäander-Design immer nur der gesamte Chip beleuchtet werden konnte, war eine Aussage über den Einfluss der aktiv an der Auslese wahrgenommenen Induktivität nicht möglich. Durch das Streifen-Design und die Positionsveränderung der Photonen auf dem SNSPD ist der Bereich, an dem die Normalleitung auftreten kann, eingrenzbar. Damit wird eine gezielte Steuerung des aktiven Anteils von  $L_{\text{kin}}$  an der Ausleseseite möglich. Die erreichten Zeitaufösungen der unterschiedlichen Designs waren entlang des Streifens nahezu konstant. So erreichten die Werte für die IRF bei der „s“-Variante  $19,5 \text{ ps} \pm 0,05 \text{ ps}$ , bei „2p“-Variante  $27,8 \text{ ps} \pm 0,06 \text{ ps}$  und bei „3p“-Variante  $29,9 \text{ ps} \pm 0,05 \text{ ps}$  [104]. Bei Erreichen der Normalleitung in der Nähe des Coplanar-Mittelleiters wird nur noch ein Bruchteil der gesamten Induktivität durch die Auslese wahrgenommen; der Strom wird geblockt bevor die kinetische Induktivität, die mit der Streifenlänge skaliert, wirksam wird.

Anhand der Veränderungen in der CR lässt sich die Position des SNSPD-Bereiches für die verschiedenen Designs relativ genau festlegen, sodass der Beginn des aktiven Streifens zur Position  $x = 0 \text{ μm}$ -Position gesetzt werden kann. So wurde beispielsweise der Beginn des CR-Anstiegs bei  $x = 85 \text{ μm}$  der „s“-Variante (Abbildung 3.34a) als Beginn festgelegt und der CR-Abfall bei  $x = 165 \text{ μm}$  als Ende definiert. Auf diese Weise können die Streifen im direkten Vergleich, siehe Abbildung 3.35, dargestellt werden. Die grauen Markierungen heben den aktiven SNSPD-Bereich hervor. Die offenen Symbole stellen auch hier die Mittelung, die geschlossenen die einzelnen Messungen dar. Gut zu erkennen sind die unterschiedlichen Längen der Streifen und die Zunahme der Streuung in den Randbereichen, wenn nur noch ein Teil des Lichtes zur Histogrammbildung der IRF beiträgt. Insgesamt zeigt sich, dass die Zeitauflösung für den Einzelstreifen der „s“-Variante besser ist als bei den Parallelgeometrien.



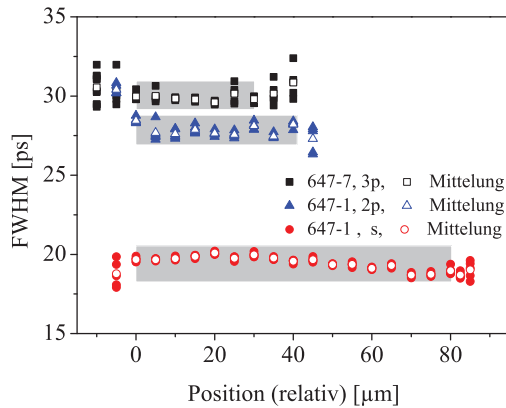


Abbildung 3.35: Positionsabhängige Zeitauflösung von Chip 3NbN647 (Streifengeometrie) der „s“- , „2p“- und „3p“-Variante. Die grau hinterlegte Fläche stellt den Bereich des Streifens dar.

Abbildung 3.36 zeigt drei ausgewählte Histogramme der „s“- , „2p“- und „3p“-Variante. Aus diesem Vergleich wird erkenntlich, dass durch die vereinfachte Geometrie die ungewünschten Nebeneffekte der „Afterpulsing“-ähnlichen Effekte, die bei den korrespondierenden Mäandern beobachtet wurden, nicht auftreten.

Die Histogramme bleiben für alle Chipvarianten nahezu ideal gaussförmig, was besonders in der logarithmischen Darstellung aus Abbildung 3.36b gut erkennbar ist. Zur besseren Vergleichbarkeit der Histogramme wurden diese normiert und die Zeitachsen so angepasst, dass die Maxima bei  $t=0$  ps liegen. Die erreichte Zeitauflösung des Einzelstreifens fällt etwas höher aus als die des äquivalenten Mäanders (19,55 ps vs. 22,5 ps).

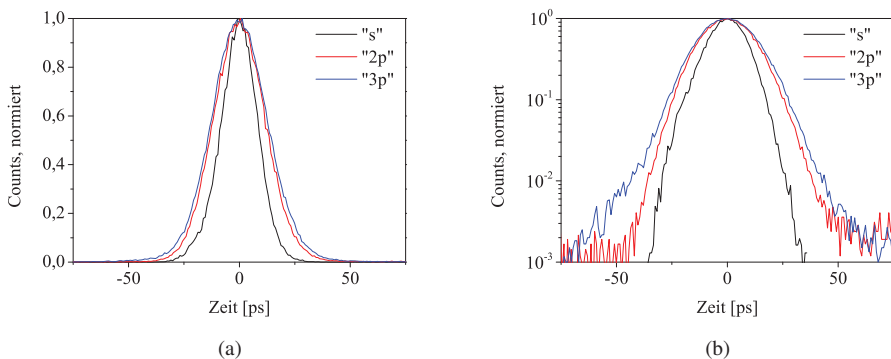


Abbildung 3.36: Zeitaufgelöste Histogramme der „s“- , „2p“- und „3p“-Varianten. (a) lineare y-Skala, (b) logarithmische y-Skala.

Die Ursache hierfür scheint nicht an dem etwas reduzierten  $L_{\text{kin}}$  zu liegen. In diesem Fall wäre zu erwarten, dass die Zeitauflösung bei verringerter aktivem  $L_{\text{kin}}$  mitskaliert, d.h. es wäre eine Verbesserung bei Positionsveränderung Richtung des zentralen Coplanar-Leiters zu erwarten. Wie aus Abbildung 3.35 hervorgeht, ist dies aus den Messdaten nicht belegbar.

Es gibt eine kleine Variation der zeitlichen Auflösung, die jedoch nicht linear verläuft. So ist in Abbildung 3.34a zunächst ein leichter Anstieg mit nachfolgendem Abfall zu beobachten. Daher ist es wahrscheinlich, dass die verbesserte Zeitauflösung eine andere Ursache hat. Eine plausible Erklärung hierfür wäre das höhere  $I_c$  bzw. der damit einhergehende höhere Biasstrom.

### **Einfluss der Schichtalterung auf die Zeitauflösung**

Eine nicht zu vernachlässigende Größe, die Einfluss auf die Eigenschaften der SNSPD nimmt, sind Alterungserscheinungen des Materials. Um Alterungserscheinungen der zur Chipherstellung verwendeten NbN-Schichten festzustellen, müssen die Chips nicht zwangsläufig bei flüssig-Helium-Temperaturen untersucht werden. Die Alterung macht sich bereits durch eine Erhöhung der Raumtemperaturwiderstände ( $R_{300\text{K}}$ ) bemerkbar. Gleichzeitig nimmt der erreichbare kritische Strom ab. Entsprechende Messdaten für  $I_c$  und  $R_{300\text{K}}$  bezüglich der Schichtalterung können Abbildung 3.37 entnommen werden. Die hier gezeigten Daten sind repräsentativ und konnten in ähnlicher Form auch bei anderen SNSPD beobachtet werden. Jede Niobnitridschicht oxidiert direkt nach Entnahme aus der Sputteranlage. Es bildet sich eine etwa 0,5-1 nm Niobpentoxidschicht ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) [32]. Die Alterung wird wahrscheinlich durch weitere Oxidation dieser  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ -Schicht entlang der Korngrenzen ausgelöst [105]. Somit steht im Querschnitt des Streifens immer weniger supraleitendes NbN zur Verfügung. Der Widerstand steigt während der kritische Strom sinkt. Mit dem Sinken des kritischen Stromes geht gleichzeitig eine Verschlechterung der zeitlichen Auflösung einher, wie in Abbildung 3.38 zu sehen. Gezeigt sind hier die Daten des Chips Nr. 3NbN281-5, welcher in den vorangegangenen Messungen die beste Zeitauflösung zeigte und bei entsprechend vielen weiteren Messungen eingesetzt wurde. Da hierbei auch einige Messreihen an anderen Experimenten durchgeführt wurden, liegen nicht für alle Messungen die Daten der erreichten Zeitaufösungen vor.

Es zeigt sich, dass bei geringerem  $I_c$  die zeitliche Auflösung geringer ist. Dies deckt sich sowohl mit den bisherigen Ergebnissen dieser Arbeit als auch mit den Erkenntnissen aus der Literatur [55]. Vergleicht man die Ergebnisse der besten Einzelstreifen (3NbN281-5 und 3NbN647-1), so zeigt sich, dass die Zeitauflösung bei höherem  $I_c$  ebenso besser ist. Bei You et al. [55] wird das höhere  $I_c$  durch Absenken der Arbeitstemperatur erreicht; das Ergebnis ist jedoch identisch. Daher scheint es sich bei dem Zusammenhang zwischen  $I_c$  und erreichbarer Zeitauflösung um eine grundsätzliche Gesetzmäßigkeit zu handeln. Dies bedeutet, dass für zeitlich hoch aufgelöste Messungen SNSPD mit hoher kritischer Stromdichte  $J_c$  benötigt werden. Die NbN-Schichten und das Design müssen auf diesen Faktor hin optimiert werden.

Für den dauerhaften Einsatz von SNSPD müssen Möglichkeiten gefunden werden, den Schichtalterungsprozess dauerhaft aufzuhalten. Abhilfe kann durch mehrere Maßnahmen geschaffen werden. Zunächst ist hier die Passivierung der aktiven NbN-Schicht zu nennen. Hier ist zu beachten, dass diese im Idealfall in situ in der Beschichtungsanlage erfolgen sollte, um zu verhindern, dass die Proben der normalen, sauerstoffhaltigen Atmosphäre ausgesetzt werden. Aus diesem Grunde bieten sich auch eher andere Nitridschichten als Passivierungsmaterial (beispielsweise Aluminiumnitrid, AlN) an als die hierfür klassischerweise verwendeten Oxide. Müssen NbN Proben oder SNSPD-Chips gelagert werden, ist eine möglichst trockene Atmosphäre in einem Exsikkator zu empfehlen. Um eine Alterung jedoch weitestgehend auszuschließen, muss ebenso der Sauerstoffgehalt der Umgebung reduziert werden. Daher hat sich die Lagerung der SNSPD im Vakuum als Mittel der Wahl hierfür herausgestellt.

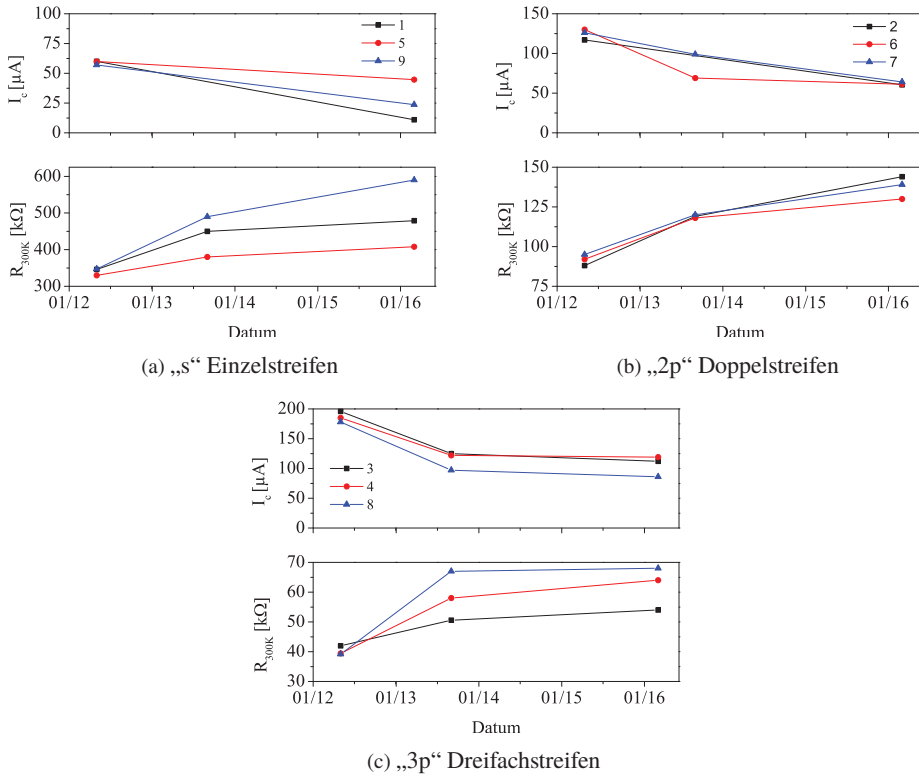


Abbildung 3.37: Veränderungen der Raumtemperaturwiderstände von und des kritischen Stromes der unterschiedlichen Chipgeometrien von Chip 3NbN281.

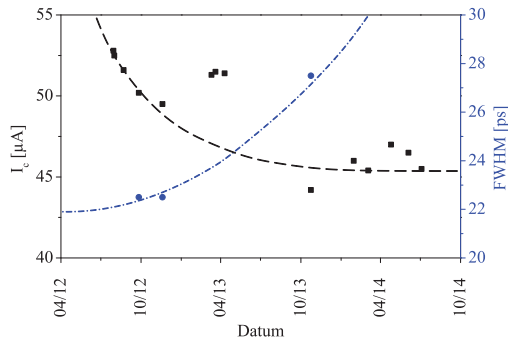


Abbildung 3.38: Veränderung des kritischen Stroms sowie der Zeitauflösung durch Alterung. Bei den gestrichelten Linien handelt es sich um Hilfslinien, die die Veränderungen leichter erkennbar machen.

### Beste erreichte zeitliche Auflösung

Im Laufe dieser Arbeit musste einer der Laser des fs-Systems, der für die TCSPC-Messungen eingesetzt wurde, wegen eines Defekts an den Hersteller eingesendet und gegen ein Neugerät ausgetauscht werden. Der neue Laser besaß trotz Abgleich der Daten mit dem Altgerät leicht andere Charakteristika (bspw. 71,3 anstatt 75 MHz). Nach dem Austausch wurden die erzeugten Pulse des fs-Systems mit Unterstützung des IOF (Fraunhofer-Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik, Jena), an dem der Laser ursprünglich entwickelt wurde, neu charakterisiert. So konnte sichergestellt werden, dass Pulsbreiten weit unterhalb einer 1 ps erreicht werden. Somit ist der Einfluss des Lasers auf die IRF vernachlässigbar. Durch den Austausch sind die erzielten Ergebnisse jedoch nicht direkt mit denen vor dem Austausch vergleichbar. Da mit diesem Aufbau eine deutliche Verbesserung in der Zeitauflösung erreicht wurde, sollen die Ergebnisse an dieser Stelle nochmals diskutiert werden.

Die hier gezeigten Messungen wurden, bis auf den ausgetauschten und neu justierten Laser, unter identischen Bedingungen wie bislang durchgeführt (Detektoreinbau, Kabel, Verstärker etc.).

Durch die notwendige längerfristige Lagerung der SNSPD (3NbN647) im Vakuum konnte bei den Chips eine Degradation verhindert werden, wodurch der Arbeitspunkt  $I_b$  identisch war. Exemplarisch wurde der auch bereits vor der Reparatur beste Chip 3NbN647-1 nochmals eingehend untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.39 zu sehen.

Während die CFD/FWHM-Charakteristik (Abbildung 3.39a) an sich nahezu unverändert erscheint, zeigt sich bei der ZC/FWHM-Charakteristik 3.39b ein Minimum zwischen -20 und -25 mV, das bei früheren Messungen nicht festzustellen war. Dieses war bei mehreren Einkühlvorgängen und auch bei zwischenzeitlichem Umbau des Systems reproduzierbar. Zudem wurde nochmals die positionsabhängige Zeitauflösung, wie in Abschnitt 3.3.3 gezeigt, untersucht. Das Ergebnis findet sich in Abbildung 3.40.

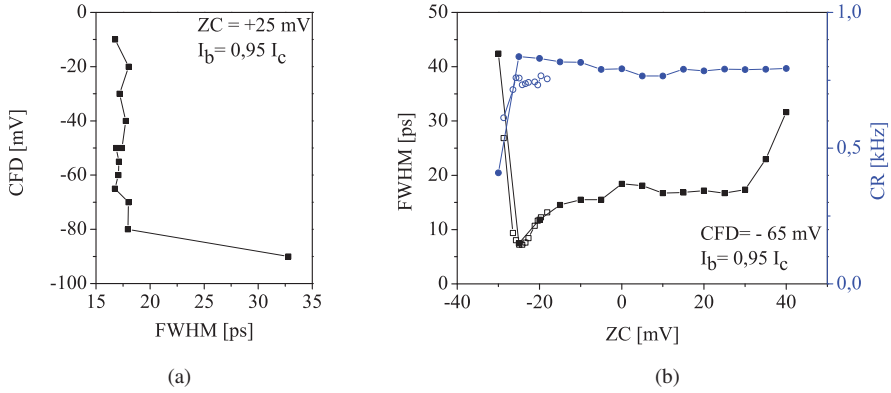


Abbildung 3.39: Untersuchung des Einflusses des (a) CFD-Niveaus und des (b) ZC-Niveaus auf die Zeitauflösung bei Chip 3NbN647-1, „s“-Variante, nach Laseraustausch.

Die Festlegung des aktiven SNSPD-Bereichs erfolgt bei Anstieg der CR. Man kann hier erstmals auch einen leichten Einfluss der beleuchteten Position bzw. dem damit einhergehenden aktiven Anteil von  $L_{kin}$  erkennen. Dieser ist jedoch sehr gering. Leider wurde die Positionsvariation bei  $ZC = -20$  mV und nicht im absoluten Minimum durchgeführt.

Dieses findet sich bei  $CFD = -65$  mV und  $ZC = -24,94$  mV und besitzt eine IRF mit einer Halbwertsbreite von 7,23 ps. Das bedeutet, dass sich mit  $\sigma_{Laser} = 0$  ps gemäß Gleichung 3.3 ein maximaler Detektorbeitrag von 2,16 ps ergibt. Nachfolgende Messungen, die zur Überprüfung der Ergebnisse dienen sollten, ergaben identische Charakteristika für CFD- und ZC-Variation und die minimal erreichbare Zeitauflösung.

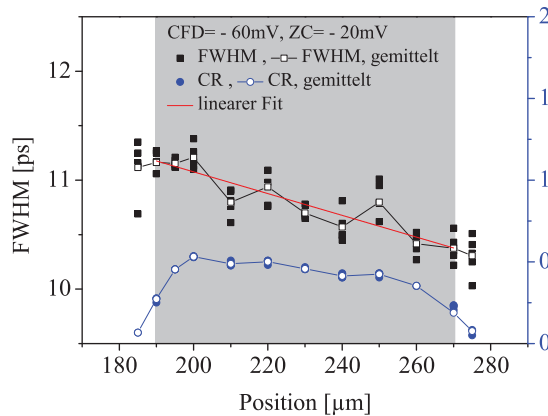


Abbildung 3.40: Positionsabhängige Zeitauflösung von Chip 3NbN647-1, „s“-Variante, Die grau hinterlegte Fläche stellt den Bereich des Streifens dar.

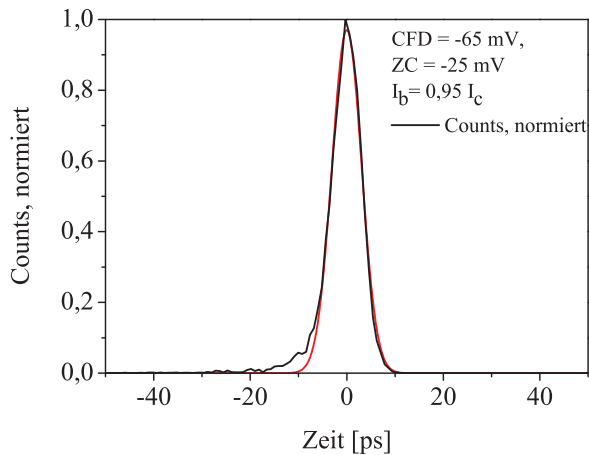


Abbildung 3.41: Histogramm der besten gemessenen IRF von Chip 3NbN647-1, „s“-Variante, bei  $CFD = -65$  mV und  $ZC = -24,94$  mV.

Das zugehörige Histogramm der IRF im optimalen Arbeitspunkt bei  $CFD = -65$  mV und  $ZC = -24,94$  mV ist in Abbildung 3.41 gezeigt. Wie ein Vergleich mit der Fit-Kurve (rot) zeigt, ist das Histogramm leicht unsymmetrisch anstatt ideal gaußförmig. Bei den Ergebnissen handelt es sich um die beste Zeitauflösung, die bisher mit einem SNSPD erzielt werden konnten.

### 3.3.4 Diskussion und Optimierungsmöglichkeiten für hohe Zeitaufösungen

Wie in den vorangegangenen Abschnitten erläutert, gibt es einige auslesetechnische Einflussfaktoren (CFD- und ZC-Level), die im Vorfeld ermittelt und optimal eingestellt werden müssen, um eine bestmögliche Zeitauflösung zu erzielen. Neben diesen wurden detektorseitig hauptsächlich zwei Parameter, die die Zeitauflösung beeinflussen können, näher untersucht:

- die kinetische Induktivität
- der kritische Strom  $I_c$  (bei unterschiedlichen Geometrien).

Es zeigte sich, dass durch die Verringerung der kinetischen Induktivität alleine, welche durch Parallelschaltung erreicht wurde, nahezu keine Verbesserung der Zeitauflösung zu erzielen ist. Zudem treten unerwünschte Effekte bei Parallelschaltung auf, die den praktischen Einsatz in einem TCSPC-System unmöglich machen. Hierzu ist eine möglichst symmetrisch geformte IRF wünschenswert. Somit ergeben sich die besten Zeitaufösungen für den praktischen

Einsatz nicht bei den Geometrien mit dem geringsten  $L_{\text{kin}}$ , sondern bei Geometrien ohne Parallelschaltung, sprich den Einzelstreifen.

Hier lassen sich allerdings durch die unterschiedlichen Geometrien weitere Abstufungen treffen. So kann bei einer Streifengeometrie eine höhere kritische Stromdichte als bei einem vergleichbaren Mäander erreicht werden. Ebenso ist die erreichbare Zeitauflösung bei diesen Streifen-SNSPD deutlich höher wie bei einem vergleichbaren Mäander. Zusammen mit Daten aus der Literatur (siehe Diskussion in Abschnitt 3.3.3) vervollständigt sich das Bild, dass ein höherer erreichbarer kritischer Strom und der damit höheren Stromdichte (bei identischer Struktur) mit einer verbesserten Zeitauflösung einher geht. Hierfür spricht sowohl die bei jedem Chip, gleich welcher Geometrie, auftretende Verbesserung der zeitlichen Auflösung bei einem höheren  $I_b/I_c$  Verhältnis als auch die Verschlechterung der erreichbaren Zeitauflösung bei Degradation.

Hieraus lassen sich einige grundsätzliche Optimierungsmöglichkeiten für SNSPD in TCSPC-Systemen ableiten: Zunächst ist es wichtig, dass die Eigenschaften der SNSPD, die in einem Messsystem eingesetzt werden, konstant bleiben. Das bedeutet, dass dauerhaft das Vakuum gewährleistet oder an einer geeigneten Passivierung für die NbN-Schichten gearbeitet werden muss. Zudem lassen sich deutliche Verbesserungen der Zeitauflösung nicht alleine durch Verringerung von  $L_{\text{kin}}$  erzielen, was bei einer gleichbleibenden aktiven Fläche nur durch Parallelschaltung umgesetzt werden kann.

Die untersuchte Streifengeometrie ist für eine möglichst hohe zeitliche Auflösung daher das Mittel zur Wahl. Eine weitere Verbesserung kann beispielsweise durch eine Erhöhung der Schichtdicke erreicht werden. Allerdings beeinflusst diese höhere Schichtdicke zusätzlich die, durch die Streifengeometrie an sich bedingte geringe DE, negativ. Abhilfe könnte hier eine Wellenleiterintegration schaffen, die die positiven Streifeneigenschaften mit einer großen Wellenleiterlänge kombiniert und damit für eine hohe DE sorgen kann. Damit wären diese Detektoren für ein reales Messsystem auch im praktischen Einsatz rentabel und mit ihrer hohen Zeitauflösung der kommerziell erhältlichen, halbleiterbasierten Konkurrenz überlegen.





## 4 Spektroskopie: SNSPD in der Anwendung

SNSPD sind in der Lage durch ihre extrem schnellen internen Reaktionen [16] sehr kurze und steile Pulse als Reaktion auf eine Einzelphotonenabsorption zu generieren. Hierbei spielt vor allem die Weitergabe der Energie des absorbierten Photons und der sich hierdurch dynamisch auf- und abbauende Widerstand eine wichtige Rolle (Abschnitt 3).

Die Genauigkeit mit der der Zeitpunkt festgelegt werden kann, wann das Photon auf den Detektor getroffen ist, wird durch den TJ des Detektors und der anderen beteiligten Komponenten bestimmt (Abschnitt 2.3 und 2.3.2). Mit der eingesetzten Technik der zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung, werden in Kombination mit dem SNSPD eine höhere Zeitauflösung möglich als mit jedem anderen kommerziellen Detektor. Besonders vorteilhaft ist, dass der SNSPD für nahezu jeden Wellenlängenbereich ausgelegt werden kann [32, 106–108]. In [19] wurde gezeigt, dass hierbei Effizienzen im energiearmen infrarot Bereich von über 90 % möglich sind. Es sind diese Eigenschaften, die den SNSPD interessant machen für Anwendungen in der Spektroskopie. Hierbei sind unter Ausnutzung des geringen *timing-jitters* zwei Szenarien für den Einsatz des SNSPD denkbar.

Das erste Szenario beschäftigt sich mit der ungewollten Entstehung von Fluoreszenz bei Raman-Streuexperimenten. Dies ist vor allem bei Anregung im sichtbaren Spektralbereich der Fall [109]. So kann es vorkommen, dass die um ein Vielfaches stärkere Fluoreszenz die interessante Ramansstreuung überlagert. Der Effekt kann so stark ausgeprägt sein, dass die Auswertung der Raman-Spektren unmöglich wird. Jedoch kann man sich das unterschiedliche zeitliche Verhalten der beiden Effekte zunutze machen. Streuprozesse erfolgen instantan. Fluoreszenz benötigt eine kurze Zeit, um das Strahlungsmaximum zu erreichen und klingt anschließend mit einer materialspezifischen Konstante exponentiell ab, siehe Abbildung 4.1. Es ist zu erwarten, dass sich mit der hohen Zeitauflösung der SNSPD und TCSPC ein Großteil der Fluoreszenz unterdrücken lässt, da die Raman-Streuung zeitlich vor bzw. zu Beginn des Fluoreszenzanstieges erwartet wird.

Die zweite Einsatzmöglichkeit ergibt sich, wenn die Faser selbst als dispersives Element fungiert [21, 110]. Hierbei macht man sich die intrinsischen Eigenschaften der Faser zu Nutze (Abschnitt 2.4). Bei ausreichender Faserlänge können die Ramanbanden zeitlich und damit auch spektral so weit auseinander gezogen werden, dass die einzelne Banden separiert werden können. Die minimal erreichbare Breite der Banden bzw. die spektrale Auflösung hängt hierbei vom Zusammenspiel zwischen zeitlicher Auflösung des Systems (Abschnitt 2.3.2) und der Faserlänge (Abschnitt 2.4.3) ab.

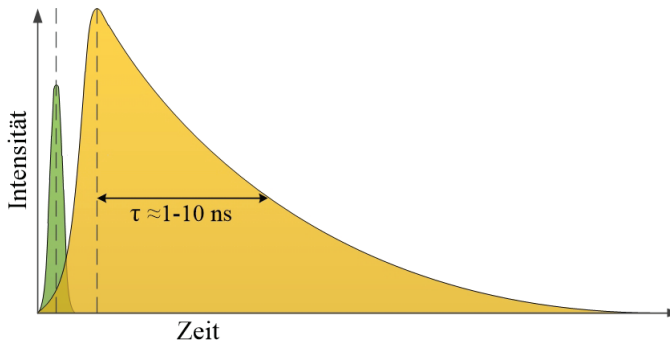


Abbildung 4.1: Qualitativer zeitlicher Verlauf von Fluoreszenz bei gepulster Anregung und Ramanstreuung. Der grüne Puls zu Beginn des Signals stellt die Ramanstreuung dar. Die Anregung erfolgt zeitgleich zum Streuprozess und mit identischer Pulslänge. Die orange Kurve stellt den Verlauf der Fluoreszenz dar. Klar ist, dass der große Teil, der im Anschluss an den Streuprozess das integrierte Signal (klassische Spektrometermessung) überlagern würde bei zeitlicher Separation abgetrennt werden kann.

## 4.1 Zeitaufgelöste Spektroskopie mit SNSPD

### 4.1.1 Experimenteller Messaufbau

Der Messaufbau zur Realisierung der Experimente zur Messung der Raman-Streuung mit und ohne Fluoreszenz setzt sich aus drei Hauptkomponenten zusammen, die in Abbildung 4.2 in einem Schema dargestellt sind: Dem optischen Aufbau, das kryogene Messsystem mit SNSPD sowie Stromversorgung und Auslesepfad mit TCSPC-Elektronik.

**Optischer Aufbau für die Raman-Spektroskopie** Das Raman-Spektroskopie Setup (siehe Abbildung 4.2 und 4.3) besteht aus einem Nd:Vanadate Pikosekunden Laser System (High Q picoTrain, High Q Laser, Österreich), der eine Repetitionsrate von 80 MHz bei einer Pulslänge von 7 ps besitzt. Zur Anregung der Probe wird die zweite Harmonische der Grundwellenlänge des Lasers verwendet, welche bei 532 nm liegt. Die spektrale Breite des Lasers bei dieser Wellenlänge entspricht hier 0,3 nm, was einer Auflösung von  $10,6 \text{ cm}^{-1}$  entspricht (Angabe in Wellenzahlen, in der Spektroskopie gebräuchlicher, siehe Abschnitt 2.5.2).

Für die Experimente haben wurde eine Gradientenindex-Faser zu verwenden, da sie viele Vorteile der Multimode-Faser bietet, jedoch keine so starke Modendispersion aufweist. Das ist für die Anwendung der Faser als dispersives Element wichtig. Um den Einfluss der Dispersion möglichst gering zu halten, wurde für die Experimente zur zeitlichen Trennung von Raman-Streuung und Fluoreszenz (Abschnitt 4.1.2) ein möglichst kurzes kurzes Faserstück von etwa 2 m für die Signalführung verwendet.

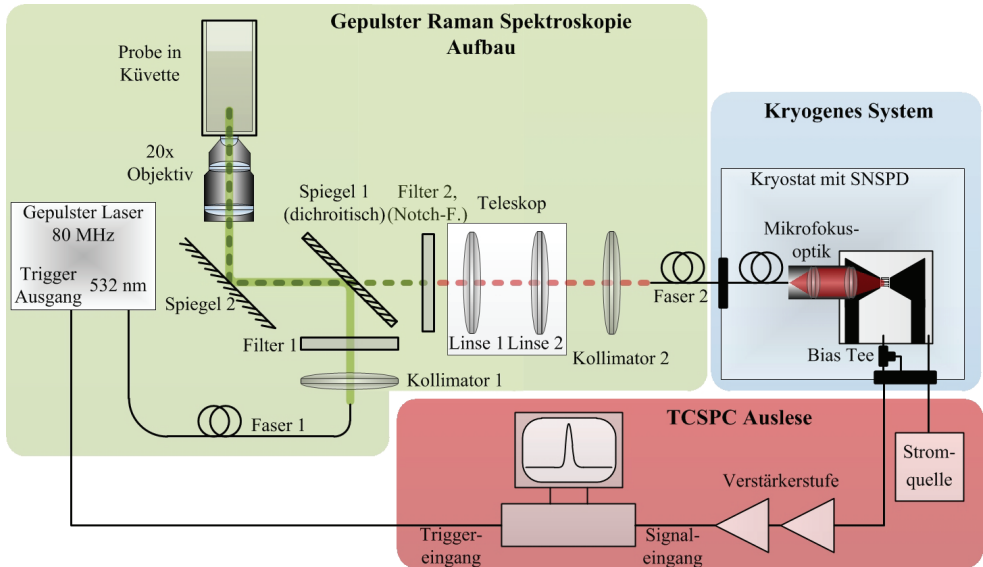


Abbildung 4.2: Aufbau der gesamten Messanordnung für die Spektroskopiemessungen.

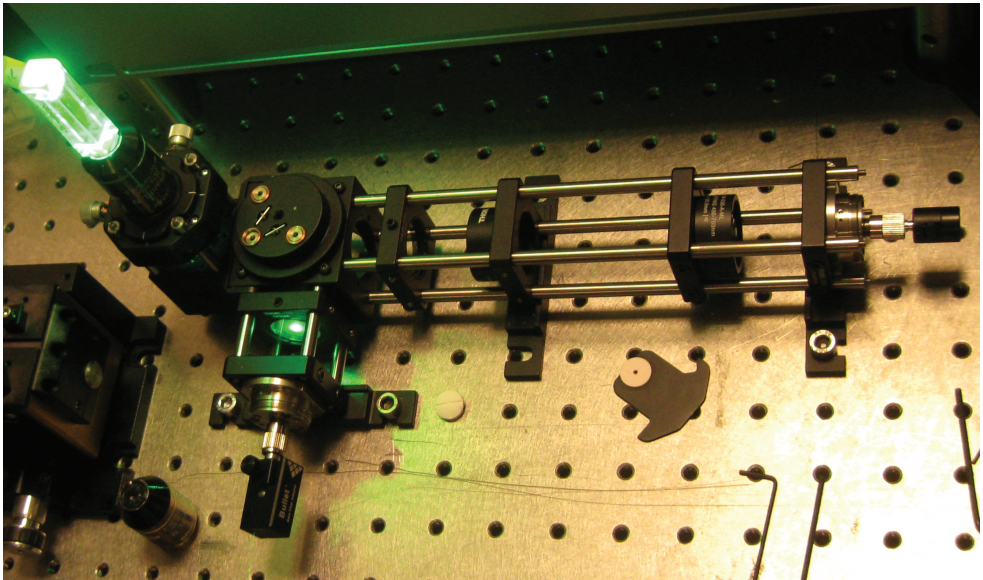


Abbildung 4.3: Optischer Messaufbau für die Messungen von Proben, die Raman-Streuung und Fluoreszenz bzw. Raman-Streuung aufweisen. Der Fotoausschnitt entspricht dem grün hinterlegtem Teil des kompletten schematischen Messaufbaus in Abbildung 4.2.

Die Laserpulse werden am Ausgang des Lasers in eine kurze Glasfaser (etwa 100 cm) eingekoppelt, die das Licht zum optischen Aufbau leitet. Nachdem das Licht den Kollimator (Kollimator 1) und den Laserlinienfilter passiert hat (Filter 1), werden die Pulse über Spiegel (Spiegel 1, 2) umgelenkt und auf die Probe mit einem 20 x Objektiv fokussiert. Dieses Objektiv wird ebenfalls verwendet, um das zurückgestreute Licht zu sammeln. In Abbildung 4.2 ist das durch die gepunktete dunkelgrüne Linie in Abbildung 4.2 dargestellt. Der dichroitische Spiegel lässt das Raman-Streulicht passieren, das reflektierte Licht des Anregungslasers wird jedoch geblockt. Ein zusätzlicher Notch-Filter (Filter 2) im Signalpfad reduziert noch einmal zusätzlich die Anzahl möglicher Photonen aus dem Anregungslaser. Die nachfolgenden Linsen (Linse 1,2) werden in einer Teleskopkonfiguration verwendet, um den Fokusedurchmesser zu reduzieren und die Konfokalität des Systems zu verbessern. Im Anschluss wird das Licht in eine Sammelfaser (Faser 2) eingekoppelt (Kollimator 2). Die Sammelfaser kann für die Messungen an ein Spektrometer oder den Kryostaten über einen Faserkoppler angeschlossen werden.

**Anpassung des kryogenen Messsystems** Im Gegensatz zu den in Abschnitt 3.1.2 beschriebenen System wurde lediglich die verwendete Faser ausgetauscht. Der Rest des Systems konnte ohne weitere Veränderungen eingesetzt werden.

**Auslese mit TCSPC** Das eingesetzte Messverfahren der zeitkorrelierten Einzelphotonenzählung wurde bereits in den Grundlagen (Abschnitt 2.3) besprochen. Weitere Details zu den Messungen mit den SNSPD finden sich in Kapitel 3, speziell in Abschnitt 3.1.2.

## 4.1.2 Separation von Fluoreszenz und Raman-Streulicht

Das Auftreten von Fluoreszenz bei der Messung von Raman-Streuung stellt immer wieder eine Herausforderung dar. Zunächst kann versucht werden, durch Wahl einer geeigneten Anregungswellenlänge das generelle Auftreten von Fluoreszenz zu vermeiden. Beim Einsatz von infraroten Strahlungsquellen erfolgt die Anregung elektronischer Übergänge deutlich seltener. In der Folge tritt auch Fluoreszenz nicht oder mit deutlich reduzierter Intensität auf. Die Raman-Intensität skaliert mit  $I_{\text{Raman}} \propto 1/\lambda^4$ , sodass bei der Verwendung von größeren Wellenlängen mit einem starken Signalverlust zu rechnen ist [111]. Auch das Ausnutzen von sog. "Photobleaching" bei dem durch längere Bestrahlung der Probe vor der eigentlichen Messung die Intensität der störenden Fluoreszenz nachlässt, kann nicht immer erfolgreich angewendet werden.

So haben sich im Laufe der Zeit einige weitere Strategien entwickelt, um Fluoreszenz zu umgehen. Diese lassen sich grob in die folgenden Kategorien einteilen: Zeit- und Wellenlängendomänen basierte Techniken sowie computergestützte Berechnungsmethoden [112]. In dieser Arbeit wird sich aufgrund der eingesetzten Messmethodik speziell auf die Zeitdomänen Technik bezogen.

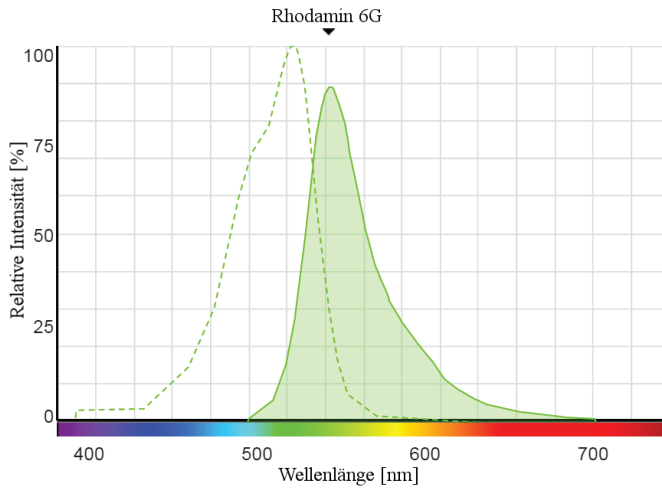


Abbildung 4.4: Absorptions- und Emissionsspektrum von Rhodamin 6G. Die gestrichelte Kurve stellt die Absorption, der grün markierte Bereich hingegen die Emission dar. Die Kurve wurde [113] entnommen unter der Voraussetzung, dass ein Anregungslaser mit einer Wellenlänge von 532 nm verwendet wird.

Diese hat zum Ziel durch das zeitliche Auflösen des Summensignals von Raman und Fluoreszenz (Abbildung 4.1) den Streueffekt weitestgehend von der Fluoreszenz zu befreien. Nötig sind hierzu eine ausreichend hohe Zeitauflösung des Detektorsystems und entsprechende Eigenschaften von Probe und Fluorophor.

Für den Nachweis des Messkonzepts, wurde der Probenauswahl für die Raman-Experimente besondere Aufmerksamkeit geschenkt. Eine Probe, die sowohl Raman-Streuung als auch Fluoreszenz aufwies, wurde zusammengestellt. Da das sich Sammeln und Einkoppeln der Raman-Streuung der während der Vorläuferexperimente als Herausforderung darstellte, wurde Wert auf beste Streueigenschaften des Raman-Streuers gelegt. Aufgrund seiner starken Streueigenschaften, wurde Cyclohexan eingesetzt, das auch als Kalibrierungsstandard verwendet werden kann [114].

Als Farbstoff für die Fluoreszenzkomponente wurde Rhodamin 6g ausgewählt, dessen maximale Absorption bei 525 nm liegt (Abbildung 4.4). Bei der Anregungswellenlänge von 532 nm, welche bei den Experimenten verwendet wurde, konnte somit mit einer starken Fluoreszenzkomponente gerechnet werden. Die Emission von Rhodamin 6G erstreckt sich über einen breiten Wellenlängenbereich zwischen 500 und 700 nm wobei sich Absorptions- und Emissionsspektrum teilweise überlappen. Der breite Wellenlängenbereich für die Emission ist typisch für eine Fluoreszenz, siehe 2.5.1.

## Zeitaufgelöste Messung von Raman-Streuung und Fluoreszenz

Im Gegensatz zur Raman-Streuung weist das Fluoreszenzspektrum keinerlei Banden auf. Die Emission ist durch die interne Relaxation ebenfalls hin zu niedriger Energie bzw. größeren Wellenlängen verschoben. Raman- und Fluoreszenzspektrum überlappen sich demnach, was eine direkte spektrale Trennung unmöglich macht. Dies ist auch die Hauptproblematik bei der klassischen Spektrometermessung, da diese integral erfolgt. Bei einem Unterschied in der Intensitäten von etwa dem Faktor 1000 zugunsten der Fluoreszenz ist klar, dass auftretende Fluoreszenz unter allen Umständen während einer Raman-Messungen zu unterbinden ist. In Abbildung 4.6 sind Messungen mit einem klassischen Spektrometer (Shamrock 303i, Andor) zu gezeigt. Die verwendeten Proben (Tabelle 4.1) weisen unterschiedlich starke Fluoreszenz auf. Die Proben beruhen auf reinem Cyclohexan (FR0), dem nach und nach mehr von dem Fluoreszenzfarbstoff Rhodamin 6g (R6g) zugefügt wurde. Sind die Banden bei der reinen Cyclohexanprobe (FR0) noch gut als solche erkennen, werden sie bei zunehmender Konzentration von Rhodamin 6g (FR1, FR2, FR4) mehr und mehr überlagert bis sie irgendwann nicht mehr von der Fluoreszenz zu unterscheiden sind. Die Raman-Banden gehen im Rauschen der Messkurve unter.

Im Vorfeld wurde der verwendete SNSPD (Tabelle 4.2) eingehend analysiert und der erreichbare TJ des Systems bestimmt (Abschnitt 2.3.2 und 3.2.1). Da der Chip zum Zeitpunkt des Einsatzes nicht mehr den ursprünglichen kritischen Strom von  $50,3 \mu\text{A}$  erreichte, ist der zu diesem Zeitpunkt erreichbare TJ auch nicht mehr identisch. Der angegebene Wert bezieht sich auf den Wert, der bei einem Bias-Strom von  $39,7 \mu\text{A}$  laut der Charakteristik aus (Abbildung 3.3.2) voraussichtlich erreicht werden kann. Der in der realen Messung erzielte Wert kann etwas von dieser Angabe abweichen.

Der verwendete Messaufbau entspricht dem zu dem in Abschnitt 4.1.1 beschriebenen. Zur Überprüfung des optischen Aufbaus wurde zunächst ein Leermessung durchgeführt, bei der sich nur die Probenküvette im Strahlengang befand (Abbildung 4.5). Aus der Leermessung kann abgelesen werden, dass es einen leichten fluoreszenzartigen Untergrund durch die Küvette gibt. Dieser ist allerdings sehr schwach und kann im Vergleich zu den Intensitäten einer realen Messung mit Fluorophor vernachlässigt werden. Zudem zeigt diese Messung auch, dass keinerlei Reflexionen im System vorhanden sind, da keine zusätzlichen Peaks im Signalverlauf auftreten.

Tabelle 4.1: Übersicht der Spektroskopieproben.

Nr.	Zusammensetzung	Zusatzinformation
FR0	Cyclohexan	reines Cyclohexan
FR1	Cyclohexan+R6g	stark verdünnt zugefügtes R6g
FR2	Cyclohexan+R6g	doppelte R6g Konzentration wie FR1
FR4	Cyclohexan+R6x	vierfache R6g Konzentration wie FR1

Tabelle 4.2: Daten des SNSPD für die zeitaufgelösten Messungen.  $\text{IRF}_{\text{System,Raman}}$  ( $\text{IRF}_{\text{S,R}}$ ) gibt die Werte der IRF bei den Raman-Messungen an.  $\text{IRF}_{\text{System}}$  ( $\text{IRF}_{\text{S}}$ ) gibt die Werte aus Abschnitt 3.1.1 ermittelt wieder.

Chip-Nr	Typ	Geometrie	$I_c$	$\text{IRF}_{\text{S,R}}$	$\text{IRF}_{\text{S}}$
3NbN281-5	single wire	Mäander 5x5 $\mu\text{m}$	44,5 $\mu\text{A}$	$\approx 27$ ps $I_b=39,7$ $\mu\text{A}$	22,5 ps $I_b=47,7$ $\mu\text{A}$

Für die TCSPC-Messungen wurde zunächst die Probe mit der geringsten Beimischung von R6g (FR1) gewählt (Abbildung 4.6, rote Kurve). Diese Probe bietet für den Beginn der Messungen einen eindeutigen Fluoreszenzuntergrund während die Raman-Banden im Spektrometer ebenfalls noch relativ gut zu erkennen sind. Die optische Leistung am Faserende der Sammelfaser wurde so eingestellt, dass die Detektion im Einzelphotonbereich lag. Dies lässt sich am Verlauf der Ergebnisse nachvollziehen, da keinerlei Pile-up Effekte (Abschnitt 2.3.3) auftreten.

Das Ergebnis der TCSPC-Messung von FR1 ist in Abbildung 4.7 gezeigt. Das zu betrachtende Zeitfenster wurde von  $3,3$  ns auf  $12,5$  ns, im Vergleich zu Abbildung 4.5, vergrößert, sodass ein größerer Bereich der Fluoreszenzkomponente zu sehen ist. Damit ergibt sich durch das Verhältnis von Fensterbreite zu Anzahl der Zeitslots ( $\frac{12,5 \text{ ns}}{4096}$ ) eine Zeitslotbreite von  $t_{\text{slot}} \approx 3,05$  ps (Abschnitt 2.3.4).

Es zeigt sich ein steiler Signalanstieg, gefolgt von einem exponentiellen Abfall. Ein typischer zeitlicher Verlauf einer Fluoreszenzkurve. Zudem lässt sich in der Anstiegsflanke ein weiterer Signalanteil erahnen. In der Vergrößerung dieses Zeitbereichs erkennt man klar einen Extrapeak.

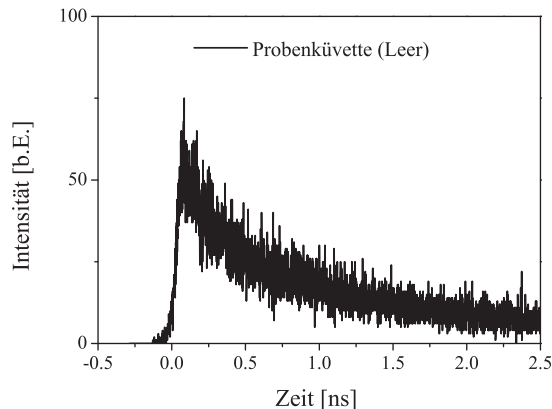


Abbildung 4.5: TCSPC: Leermessung mit Probenküvette im Strahlengang.



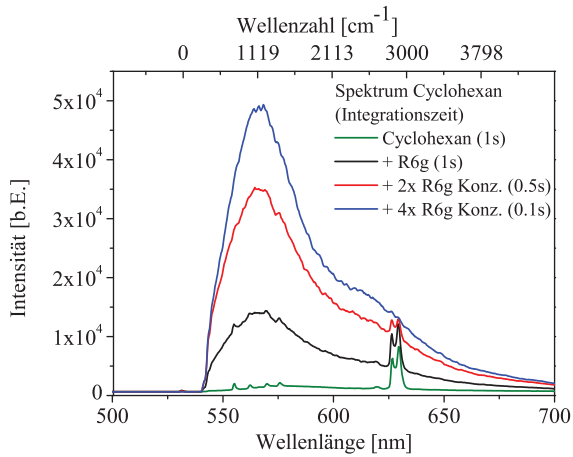


Abbildung 4.6: Spektren der Probenzusammenstellung für Messungen von Raman-Streuung mit und ohne Fluoreszenz. Als Raman-Streuer kommt Cyclohexan (grün) zum Einsatz, die Fluoreszenzkomponente wird durch Rhodamin 6g manuell hinzugefügt (steigende Konzentration von Rhodamin 6g: blau, rot, grün). Das Signal-zu-Rausch Verhältnis wird durch die Fluoreszenz zunehmend schlechter bis die Streukomponente nicht mehr zu erkennen ist. Die Messdauern für die Kurven sind unterschiedlich, da sie bei zunehmender Fluoreszenz entsprechend verkürzt wurden.

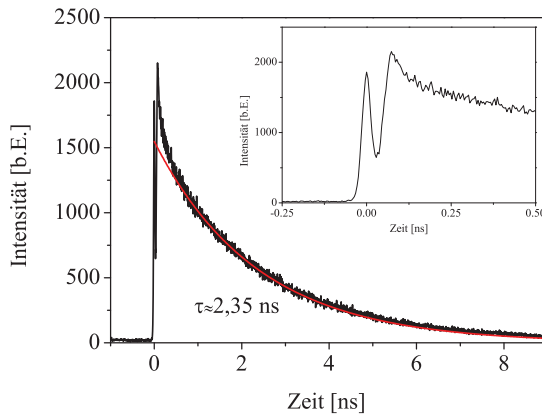


Abbildung 4.7: Ergebnis der TCSPC-Messung einer Probe bestehend aus Cyclohexan (Raman-Streuer) und beigefügtem Rhodamin 6g (FR1). Das zugehörige Spektrum ist in Abbildung 4.6 in rot zu finden. Man erkennt einen sehr steilen Anstieg gefolgt von einem exponentiellen Abfall, der charakteristisch ist für fluoreszierende Materialien. Das eingebettete Diagramm zeigt den Ausschnitt um 0 ns. In der Vergrößerung der Anstiegsflanke ist ein weiterer Signalanteil zu erkennen. Dieser Puls vor dem Beginn der Fluoreszenz ist das Raman-gestreute Licht, das instantan auftritt.



Der Unterschied zu den Literaturwerten der Lebensdauern für Rhodamin 6g könnte auch durch auftretende Dispersion in der Faser verursacht worden sein. Durch den Fasereinsatz ist dies zu erwarten. Bei diesem handelt es sich um gestreutes Licht bzw. genauer gesagt um die im gesamten Spektralbereich gebündelte Raman-Streuung. In diesem Peak vor Erreichen des Fluoreszenzmaximums sind alle Raman-Banden des Spektrums enthalten.

Für eine Wellenlängenseparation wäre in diesem Falle ein Monochromator nötig, der vor der Sammelfaser die Wellenlängenseparation ermöglicht. Die rote Kurve zeigt einen Fit der Abfallszeit von  $\tau = 2,35$  ns der Fluoreszenzkurve. Hierbei wird die  $1/e$  Intensität, welche auch Lebensdauer genannt wird, angegeben. In der Literatur finden sich keine konkreten Angaben für Rhodamin 6g in Cyclohexan. Die Lebensdauer von Rhodamin 6g in unterschiedlichen Lösungsmitteln wird jedoch mit etwa 4 ns angegeben [115]. Eine Veränderung hin zu kürzeren Lebensdauern ist bei höheren Konzentrationen zu erwarten [116].

Da die Konzentration der Proben im Vorfeld nicht bestimmt wurde, lässt sich die verkürzte Lebensdauer unter Umständen hierdurch erklären. Was jedoch dagegen spricht ist, dass sich die Lebensdauer bei den Messungen mit höheren Konzentrationen nicht weiter verringert. Abbildung 4.8 zeigt die drei Kurven FR1, FR2 und FR4 im Vergleich, die berechneten Lebensdauern sind ebenfalls angegeben. Die Zeitslotbreite liegt hier bei 4,07 ps. Die Lebensdauern verändern sich nur geringfügig; im Gegensatz dazu sieht man den deutlichen Unterschied der Messergebnisse, der durch die veränderten Konzentrationsverhältnisse zustande kommt. Normiert man die Kurven und betrachtet die Anstiegsflanken, so sieht man, dass ein der durch die Raman-Streuung verursachte Peak zu Signalbeginn bei steigender Konzentration mehr und mehr von der Fluoreszenz überlagert wird. Das bedeutet, dass eine Separation ab einer gewissen Stärke der Fluoreszenz nicht mehr gewährleistet werden kann. Dies ist sowohl von der möglichen Auflösung des Systems wie von der Fluoreszenzintensität abhängig.

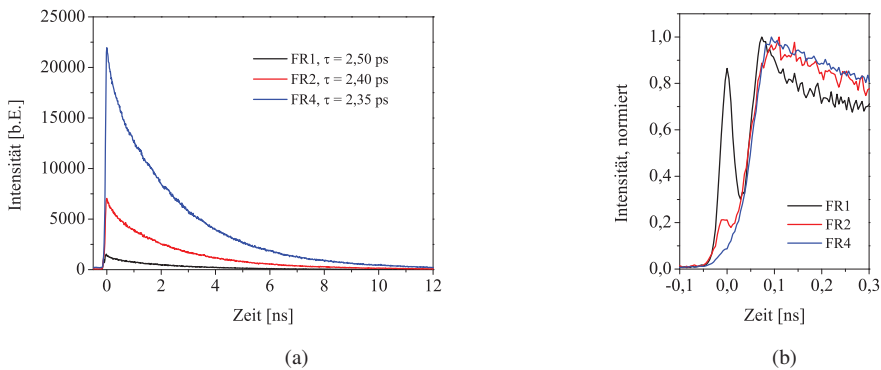


Abbildung 4.8: (a) Zeitaufgelöste Messung von unterschiedlichen Konzentrationen sowie Lebensdauerbestimmung bei unterschiedlichen Rhodamin 6g Konzentrationen, gelöst in Cyclohexan. Die Lebensdauern verkürzen sich nicht und sind annähernd konstant. (b) normierte Kurven mit Vergrößerung des Anstiegsbereiches.

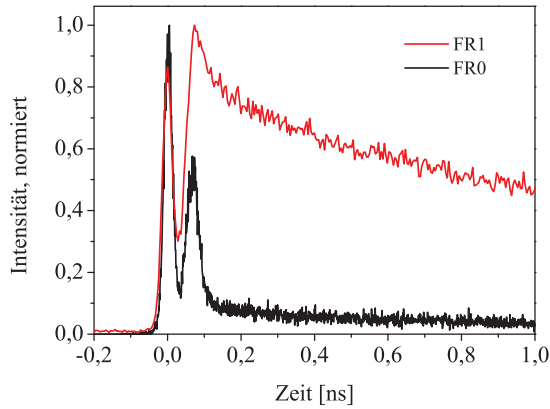


Abbildung 4.9: Zeitlich aufgelöste Messung von reinem Raman-Streuer (Probe FR0) und Raman-Streuer mit Fluoreszenzanteil (Probe FR1) im Vergleich.

Im direkten Vergleich zwischen der reinen Cyclohexanprobe (FR0) und der FR1-Probe sieht man, dass die leichte Erhöhung des Maximums von FR1 zum Zeitpunkt des Fluoreszenzmaximums in Wirklichkeit ein zweites Streumaximum ist (Abbildung 4.9). Noch deutlicher wird es, wenn optische Filter eingesetzt werden, die nur bestimmte Wellenlängenbereiche passieren lassen. Abbildung 4.10 zeigt in (a) das Spektrum von Methanol sowie zeitaufgelöste Messungen mit den unterschiedlichen optischen Filtern in (b).

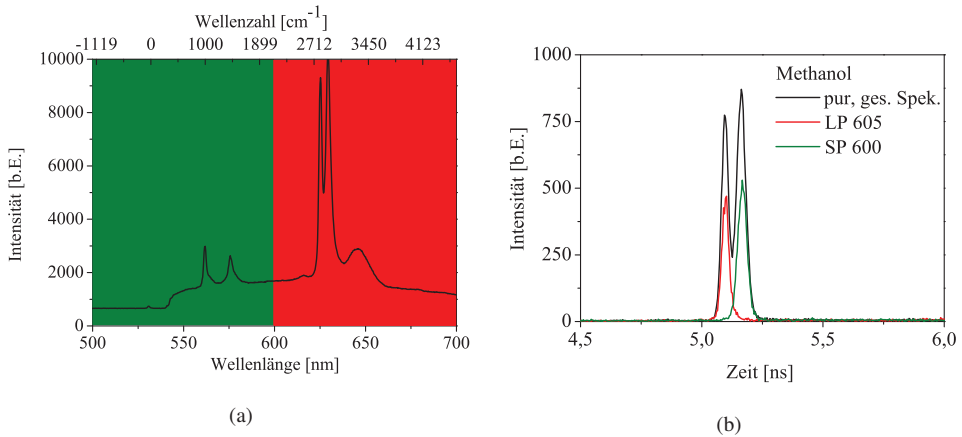


Abbildung 4.10: (a) Spektrum von Methanol. In grün: Wellenlängenbereich  $<600$  nm (Kurzpass 600); in rot: Wellenlängen  $>605$  nm (Langpass 605). (b) TCSPC-Messung von Methanol. Die äquivalent zu 4.10a eingefärbten Kurven zeigen die Ankunftszeiten der jeweiligen Wellenlängenbereiche. Die Blaue Kurve entspricht der Summenfunktion.

Ein Kurzpass (SP) lässt nur  $\lambda < 600$  nm durch, was grün in den Grafiken dargestellt wird. Der Langpass öffnet ab  $\lambda = 605$  nm was entsprechend in rot eingefärbt wird. Die zeitaufgelöste Messung zeigt ganz klar, dass die unterschiedlichen Wellenlängenbereiche messbar andere Laufzeiten in der Faser besitzen. Hieraus lassen sich einige Schlussfolgerungen ziehen. Zum Einen ist die Faser ein wichtiger Bestandteil des Gesamtsystems. Sie wird benötigt, um das Licht effektiv zum Detektor zu bringen. Zum Anderen muss beachtet werden, dass es schon bei sehr kurzen Faserlängen zu messbaren Dispersionseffekten kommt. Aus diesem Grund ist es sinnvoll bei Experimenten, bei den die Trennung von Fluoreszenz und Streueffekt im Vordergrund steht, einen Monochromator vorzuschalten, der bereits die Wellenlängenbereiche, die in die Faser eingekoppelt werden, entsprechend zerlegt. So können Dispersionseffekte von vorn herein minimiert werden.

Ebenso kann die Eigenschaft, dass Pulse unterschiedlicher Wellenlänge auseinander laufen, direkt ausgenutzt werden, um ein Spektrometer zu realisieren, das keinerlei klassisches Gitter benötigt und damit mechanisch extrem stabil ist.

### 4.1.3 Raman-Spektroskopie

Der Informationsgehalt der untersuchten Verbindungen liegt bei der Raman-Spektroskopie in Form von diskreten, Raman-aktiven Banden vor. In der Spektroskopie werden diese üblicherweise als Intensität über der Wellenzahl dargestellt werden (Abschnitt 2.5.2). Diese Banden sind, je nach chemischem Bindungstyp, bei bestimmten Wellenzahlen zu erwarten. Die Abfolge und Position dieser Banden innerhalb der Spektren erlaubt es daher Rückschlüsse auf die Zusammensetzung der untersuchten Proben und deren Eigenschaften zu ziehen. Wichtig ist, die in diesem Zusammenhang genannte Wellenzahl von dem in technischen Fachrichtungen verwendeten Wellenvektor  $\vec{k}$  (manchmal auch Wellenzahl genannt) zu unterscheiden. Dieser Wellenvektor beschreibt den Vektor, der auf einer Wellenfront senkrecht steht und bei einer ebenen Welle die Ausbreitungsrichtung angibt [117].

Bei den im Folgenden diskutierten Ergebnisse wurden, wie im vorangegangenen Abschnitt bereits angedeutet, Fasern als dispersive Elemente eingesetzt. Bei den Messungen wurde eine konstante Anregungswellenlänge von 532 nm verwendet. Daher können die Messungen auch ohne die Umrechnung in die Wellenzahlenskala prinzipiell direkt miteinander verglichen werden. Um Interessierten anderer Fachrichtungen eine bessere Vergleichbarkeit zu ermöglichen, wurde die Wellenzahlenskala (Berechnung mit Gleichung 2.20) ebenfalls angegeben.

## Von der Zeitauflösung zum Spektrum

Um eine Faser als optisches Gitter verwenden zu können, wird eine Umrechnung zwischen Zeit- und Wellenlängenskala benötigt. Hierzu muss die Zeit, die Photonen in einer Faser benötigen, um eine Strecke innerhalb einer Faser zurückzulegen, in die entsprechende Wellenlänge übersetzt werden. Wie lange Photonen für eine feste Weglänge in der Faser benötigen, hängt von mehreren Faktoren ab. Allen Faserarten gemeinsam ist, dass sich Photonen unterschiedlicher Energie bzw. Wellenlängen aufgrund der Materialdispersion unterschiedlich schnell in der Faser fortbewegen (siehe Abschnitt 2.4.2). Bei Mehrmodenfasern kommt zusätzlich der Effekt der Modendispersion zum Tragen. Die ausbreitungsfähigen Moden besitzen unterschiedliche Laufzeiten und führen zur Verlängerung von zeitlich kurzen Pulsen. Die reinen Laufzeitunterschiede, die durch chromatische Dispersion innerhalb einer Faser entstehen, können beispielsweise mit Hilfe des Dispersionskoeffizienten bestimmt werden. Dieser wird von den Faserherstellern allerdings nicht standardmäßig ermittelt und ist dem Endkunden daher nicht im Detail bekannt. Die Bestimmung ist relativ aufwändig [118–120].

Dennoch ist es möglich, die zeitliche Verzögerung der einzelnen Wellenlängen bzw. Raman-Banden mit den Abschnitt 2.4 entnehmbaren Gleichungen zu bestimmen. Voraussetzung ist hierzu eine vorliegende Messung einer Kalibrierprobe (beispielsweise Cyclohexan) mit einer Faser. Die Ankunftszeiten der einzelnen Raman-Banden sowie deren zeitlicher Abstand können mit den zugehörigen Wellenlängen eines Spektrums abgeglichen werden. Es entsteht eine Kalibrierungskurve zur Umrechnung von Zeit- auf Wellenlängenskala. Ist diese Kurve bekannt, können auch für andere Faserlängen entsprechende Umrechnungen vorgenommen werden. Abbildung 4.11 zeigt exemplarisch die Kalibrierkurven für drei unterschiedliche Längen von etwa 15 m, 30 m und 45 m. Die ursprüngliche Berechnung erfolgte mit der 45 m Faser.

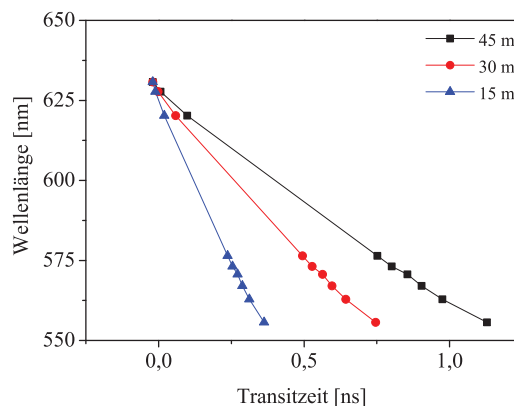


Abbildung 4.11: Wellenlängenabhängige Laufzeit von Photonen bei unterschiedlicher Faserlänge. Verwendet wurde eine Cyclohexanprobe (Spektrum: Abbildung 4.12).

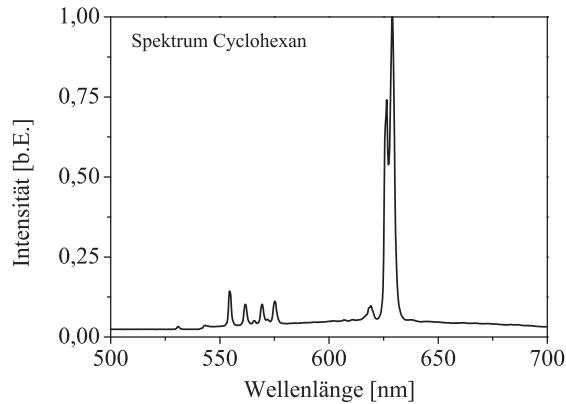


Abbildung 4.12: Spektrum von Cyclohexan.

Im Detail wird in einer spektralen Messung einer Cyclohexanprobe (Abbildung 4.12) die Wellenlänge des Peaks mit der größten zu erwartenden Wellenlänge (629 nm) des Signals als "0-s-Zeitpunkt festgelegt. Ausgehend davon wird zunächst berechnet, welche Ankunftszeit in etwa für die einzelnen Raman-Banden aus dem Spektrum zu erwarten sind.

Im Anschluss an diese erste Berechnung, kann ein Abgleich der Messergebnisse für die Laufzeiten anhand einer realen TCSPC-Messung mit der verwendeten Faser erfolgen. Nach geringer Korrektur der Faserlänge auf 48,2 m, stimmen die Ankunftszeiten der Banden aus Messung und Berechnung nahezu perfekt überein.

Abbildung 4.13 zeigt die Ergebnisse der so angepassten „45 m“-Kalibrierungskurve (verwendete Berechnungslänge von 48,2 m). Zudem wurden die Ankunftszeiten der Raman-Banden von Cyclohexan und Methanol in die Grafik eingefügt.

Die Kalibrierungskurve zeigt einen nichtlinearen Verlauf. Dieser lässt sich durch den nichtlinearen Verlauf der Brechzahl, der in die Berechnung eingeht, erklären. Infolge dessen ist auch der zeitliche Abstand zwischen zwei benachbarten Wellenlängen nichtlinear. Zum Einen bedeutet das, dass eine Rückrechnung auf die Wellenlänge bzw. Wellenzahl nur unter bestimmten Voraussetzungen möglich ist. Entweder müssen, wie bereits erwähnt, die Faserdaten sehr genau bekannt sein oder es muss wie eben beschrieben eine neue Kalibrierungsmessung mit der künftig zu verwendenden Faser durchgeführt werden.

Zudem bedeutet der nichtlineare Zusammenhang, dass die Auflösung der Messungen nicht über dem gesamten Spektrum konstant ist, sondern ebenfalls variiert. Bei kürzeren Wellenlängen (energiereicher) ist die chromatische Dispersion typischerweise stärker ausgeprägt als bei größeren Wellenlängen. Daher ist die erreichbare Auflösung für größere Wellenlängen demnach schlechter.

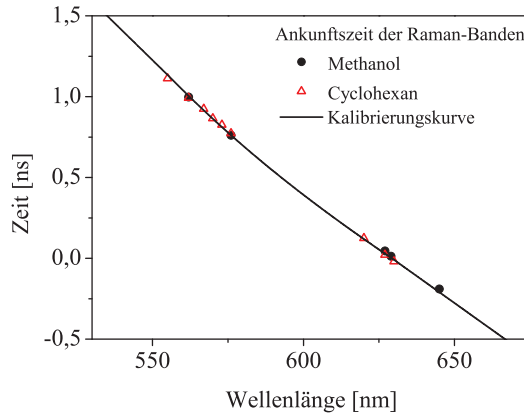


Abbildung 4.13: Die schwarze Linie stellt die mit der Faserlänge von 48,2 m berechnete Kalibrierungskurve dar. Die schwarzen Punkte sind die Maxima der Raman-Banden von Methanol, die roten Dreiecke stammen von den Maxima positionen von Cyclohexan.

## Ergebnisse

Es wurde gezeigt, dass es mit dem Standardmeanderchip aus Tabelle 4.2 mit dem darauf optimierten Messaufbau Zeitaufösungen bis zu 22.5 ps erreicht werden können. Nachdem die Kalibrierkurve für die Umrechnung von Zeit- auf Wellenlängenbereich bzw. Wellenzahlen ermittelt wurde, sollen nun die Ergebnisse des so erzeugten Faserspektrometers diskutiert werden.

Für die ersten Experimente, die den Nachweis des Funktionsprinzips erbringen sollten, wurde ein Faserstück des Typs Optigrade 550 (OM4-Standard von j-fiber, Deutschland) zur Verfügung gestellt. Für die Raman-Experimente wurde zunächst eine Faserlängen von etwa 45 m sowie unterschiedliche Raman-aktive Proben untersucht. Exemplarisch sind in Abbildung 4.14 drei von ihnen dargestellt.

Die oberste Zeile zeigt Cyclohexan, die zweite Zeile Methanol, was beides in flüssiger Form in einer Quarz-Küvette (Hellma Analytics, Deutschland) vorlag. In der letzten Zeile findet sich der Feststoff Polypropylen. In der linken Spalte ist jeweils das Spektrum, gemessen mit einem handelsüblichen Spektrometer (Shamrock 303i, Andor, England), in der rechten Spalte das faserdispersiv gemessene TCSPC-Spektrum. Hier wurde die in der Spektroskopie übliche Darstellung des Spektrums als Intensität über der relativen Wellenzahl gewählt. Die obere x-Achse zeigt beim Spektrum die Wellenlänge, beim faserdispersiven Ansatz die Zeit. Die zugehörigen Wellenzahlen wurden gemäß Gleichung 2.20 berechnet.

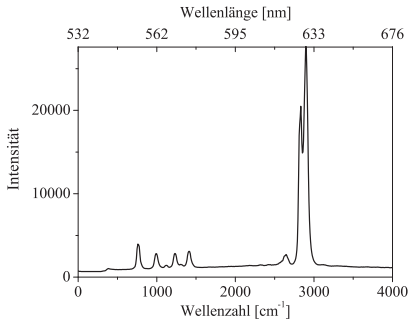
Für diese Gegenüberstellung der Messergebnisse wurde die Faser (Faser 2 in Abbildung 4.2) abwechselnd für die Aufzeichnung der Spektren an das Spektrometer oder den Kryostaten angeschlossen. Somit waren die Bedingungen für die Probe und das Einsammeln des Lichtes

für beide Messungen unverändert. Die durchschnittliche Laserleistung für Anregung der Proben der hier gezeigten Messungen (gemessen am Ausgang von Faser 1 in Abbildung 4.2) lag zwischen 11 und 13 mW; die Zählrate des Detektors lag bei allen Messungen mit 1,5 bis 4 kHz eindeutig im Einzelphotonenbereich.

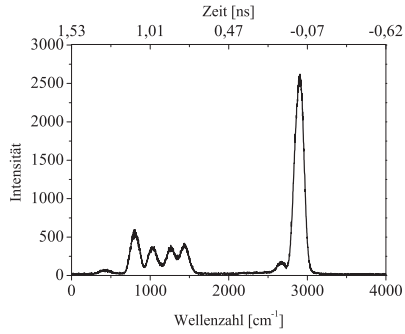
Die Transitzeit durch die Faser ist für größere Wellenlängen geringer. Das so entstehende zeitabhängige Spektrum der TCSPC-Messung ist gespiegelt zu der üblichen Darstellung bei dem die Intensitäten über der aufsteigenden Wellenlängenskala dargestellt werden. Um den Vergleich zu vereinfachen, wurde die Zeitachse der TCSPC-Messung invertiert. Die Zeit  $t=0$  s entspricht einer Wellenlänge von 629 nm, was die größte zu erwartenden Wellenlänge des Raman-Signals ist (siehe Abschnitt 4.1.3).

Vergleicht man spektrometerbasierte und faserdispersive Ergebnisse, ist zunächst positiv zu bewerten, dass die Spektren beider Messvarianten recht ähnlich aussehen. Die Materialien können bei den TCSPC-Spektren problemlos anhand ihres Spektrums unterschieden werden. Allerdings ist die Auflösung des klassischen Spektrometers deutlich höher. Das lässt sich bereits an den Banden im Bereich zwischen 800 und etwa 1500  $\text{cm}^{-1}$  erkennen. Besonders deutlich wird der Auflösungsunterschied bei den Raman Banden der CH-Streckschwingungen bei knapp 3000  $\text{cm}^{-1}$ . Dies ist vor Allem auf die variable Auflösung der einzelnen Wellenlängenbereiche zurückzuführen (siehe Abschnitt 4.1.3). Die Messungen zeigen, ein faserdispersives Spektrometer funktioniert und technisch realisiert werden kann. Im Gegensatz zu [122] in dem für eine solche Messung der zeitlich präziseste kommerziell erhältliche Detektor R3809U-50 (Zeitauflösung laut Hersteller bei 25 ps [123]) von Hamamatsu untersucht wurde, werden in unserem System auch die Verhältnisse der Intensitäten deutlich besser wiedergegeben. Dies liegt vor allem an der stark variierenden Empfindlichkeit des R3809U-50 über dem sichtbaren Wellenlängenbereich.

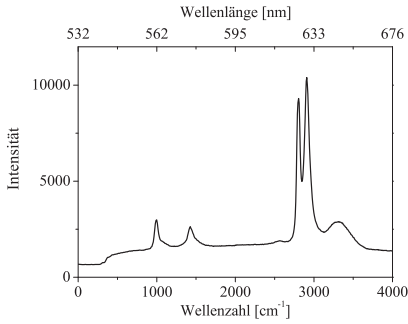
Betrachtet man die Integrationszeiten der beiden Messmethoden, so ist klar ein deutlicher Unterschied zu erkennen. Während das Spektrometer das Spektrum binnen einer Sekunde aufgezeichnete, wurde für die TCSPC-Messung 300 s integriert. Trotz der stark verlängerten Messdauer ist beispielsweise bei Cyclohexan (Abbildung 4.14a und 4.14b) die Intensität der größten Banden (um 3000  $\text{cm}^{-1}$ ) in etwa nur ein Zehntel so hoch wie die korrelierenden Banden im klassischen Spektrum. Die Ursachen hierfür liegen zum Einen am verwendeten SNSPD-Chip, der bislang noch nicht auf höchste Effizienz optimiert wurde. Die DE lag bei etwa 0,2-0,3 %, siehe [10]. Zum Anderen wurde eine OM4-Faser für die Messungen verwendet. Sie besitzt einen Kerndurchmesser von ca. 50  $\mu\text{m}$ . Dies vereinfachte die Anforderungen an den optischen Aufbau und es konnte sicher gestellt werden, dass grundsätzlich genügend Licht für die Raman-Messungen gesammelt werden kann. Die im kryogenen Bereich eingebaute Linse erlaubt eine Abbildung von 1:1. Im Idealfall ergibt dies eine 50  $\mu\text{m}$  große beleuchtete Fläche. Bei einer aktiven Detektorfläche des SNSPD von etwa 5x5  $\mu\text{m}$  kommt unter der Annahme einer gleichmäßigen Ausleuchtung dieser Fläche auf die Chipebene alleine durch diesen Flächenunterschied schon ein Verlust von 98,7 % der Photonen. Die gleichmäßige Ausleuchtung scheint aufgrund der vielen ausbreitungsfähigen, überlagerten Moden als Näherung gerechtfertigt.



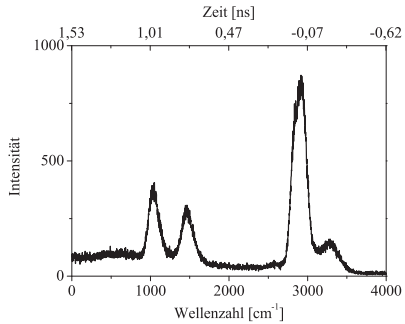
(a) Cyclohexan,  
Messung mit Spektrometer



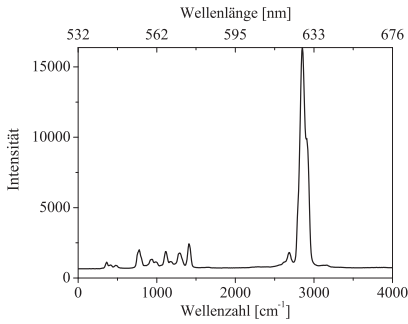
(b) Cyclohexan,  
TCSPC-Messung



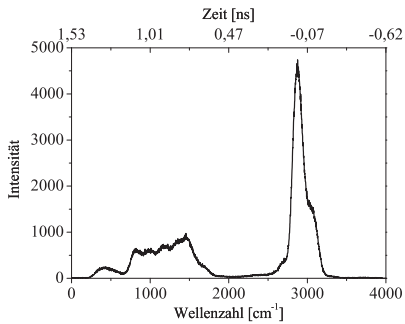
(c) Methanol,  
Messung mit Spektrometer



(d) Methanol,  
TCSPC-Messung



(e) Eppendorff-Gefäß (Polypropylen, PP)  
Messung mit Spektrometer



(f) Eppendorff-Gefäß (Polypropylen, PP),  
TCSPC-Messung

Abbildung 4.14: Gegenüberstellung der Ergebnisse bei Einsatz eines Spektrometers und TCSPC-Messungen. Materialien von oben nach unten (zeilenweise): Cyclohexan und Methanol (flüssig) sowie Polypropylen [121]) als Feststoff.



In der Realität liegen diese Verluste natürlich durch die Tatsache, dass auch ein Teil des Lichts im Mantel geführt wird und die Lichtintensität jenseits des 50  $\mu\text{m}$ -Durchmessers somit nicht abrupt auf null zurück fällt, noch höher. Zieht man nun diese beiden Kriterien in Betracht, so sinkt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon detektiert wird bereits auf etwa 0,25 %. Dass diese stark reduzierte Wahrscheinlichkeit ein Photon zu detektieren mit einer massiv verlängerten Messdauer einher geht, ist selbstverständlich. Dies lässt jedoch viel Optimierungspotential. Sowohl detektorseitig als auch seitens des optischen Aufbaus sowie der Faser.

Die mögliche Zeitauflösung des Systems wurde zu 22.5 ps bestimmt (Abschnitt 3.2.1). Es muss berücksichtigt werden, dass der Detektor während der spektroskopischen Messungen, bedingt durch Alterung, ein niedrigeres  $I_c$  erreichte. Zudem unterscheiden sich Charakterisierungs- und Spektroskopieaufbau bezüglich der Strahlführung, sodass der Puls- zu Puls-Jitter nicht mehr als vernachlässigbar angenommen werden kann. Die IRF- Werte der aktiven Systemkomponenten im hier verwendete Aufbau müssen berücksichtigt werden ( $\text{IRF}_{\text{TCSPC}} \approx 11$  ps,  $\text{IRF}_{\text{Laser}} \approx 18,4$  ps). Zudem lässt sich der Beitrag des SNSPD genauer bestimmen als in [21]. Da sich der gealterte Chip so verhält wie ein entsprechend neu hergestellter, der mit dem entsprechenden Biasstrom betrieben wird (Abschnitt 3.3.3), lässt sich der SNSPD-Beitrag auf etwa 24,6 ps bestimmen. Daraus resultiert ein Systemgesamtjitter von  $\text{IRF}_{\text{GSJ}} \approx 32,7$  ps.

Am Beispiel von Cyclohexan sollen die Ergebnisse diskutiert werden. Wie bereits angesprochen, führt die wellenlängenabhängige Dispersion zu unterschiedlichen Auflösungen. Einbußen in der Auflösung machen sich am ehesten im langwelligen Bereich des Spektrums bemerkbar. So stellt sich dies auch in der faserdispersiven Messung von Cyclohexan in Abbildung 4.14b dar. Die beiden Raman-Banden der CH-Streckschwingung bei 627,5 und 630,8 nm [124] besitzen einen spektralen Abstand von 3,3 nm. In Abbildung 4.14a können diese im Spektrum gut separiert werden während dies in TCSPC-Messung nicht mehr möglich ist. Ein Wellenlängenabstand von 3,3 nm entspricht in diesem Wellenlängenbereich rechnerisch einem zeitlichen Abstand von etwa 45 ps.

Diese Zeitauflösung ist deutlich größer als das, was durch das System erreicht an und für sich werden kann. Das Ergebnis lässt jedoch keinen anderen Schluss zu als dass die erzielte Zeitauflösung für die Trennung der beiden Banden nicht ausreicht. Nur chromatische Dispersion lässt sich dies jedoch nicht hinreichend erklären. Als Ursache kommt hierbei das zusätzliche Auftreten von intermodaler Dispersion (Abschnitt 2.4) in Frage. Da eine Gradientenindex-Faser verwendet wurde, ist dies eine realistische Annahme. Gestützt wird diese durch ein weiteres Experiment in dem unterschiedliche Faserlängen verwendet wurden. Unter der Annahme, dass nur chromatische Dispersion auftritt, ist zu erwarten, dass das Signal sich immer weiter streckt. Die Banden rücken bei längerer Faser weiter auseinander und werden separierbar. Die Spreizung selbst erfolgt nichtlinear. Die Intensität der einzelnen Banden nimmt linear mit der Länge mitwachsenden internen Faserverluste sowie dem Aufteilen der vorhandenen Photonen auf mehr Zeitslots ab. Zum Besseren Vergleich wurden die Messungen daher normiert. Die Ergebnisse der Messungen von Cyclohexan bei unterschiedlichen Faserlängen (ca. 15, 30 und 45 m) sind in Abbildung 4.15 zu sehen.

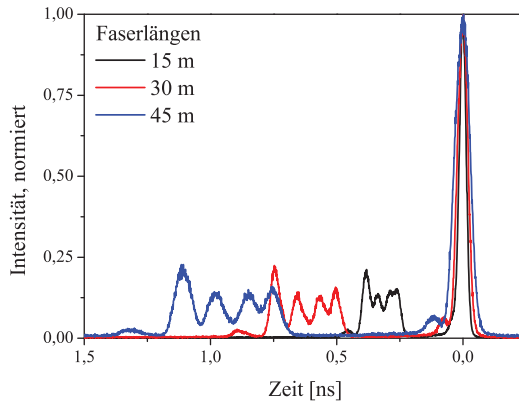


Abbildung 4.15: Vergleich dreier TCSPC-Messungen von Cyclohexan mit unterschiedlicher Faserlänge. Die Verbesserungen der Auflösung durch die verlängerte Faser von 15 auf 30 m sind jeweils im Bereich der dritten und vierten Raman-Bande von links gut zu erkennen. Eine weitere Verlängerung auf 45 m führt keiner weiteren Steigerung. Die Auflösung bleibt in etwa konstant.

Bei der Verwendung einer längeren Faser erstreckt sich das Signal, wie zu erwarten, auf einen größeren Zeitbereich. Vergleicht man die man die Trennung der Banden der 15- und 30 m-Messung (besonders gut zwischen der 3. und 4. Bande von links zu sehen), ist klar eine Verbesserung in der Separierbarkeit erkennbar. Wenn nun die Faser weiter verlängert wird (ca. 45 m), so setzt sich diese Auflösungsverbesserung jedoch nicht fort, sondern bleibt in etwa konstant. Demzufolge muss ein weiterer Effekt, der durch die längere Faser stärker zu Tage tritt, dafür verantwortlich sein. Da außer der Faser keinerlei Änderungen am System vorgenommen wurden, muss es sich hierbei um einen faserbedingten Effekt handeln. Intermodale Dispersion als Ursache ist durch die vielen ausbreitungsfähigen Moden in dem verwendeten 50  $\mu\text{m}$  Kern am wahrscheinlichsten, zumal gezeigt wurde, dass mit einer Singlemode-Faser deutlich höhere Zeitaufösungen möglich sind.

Der nächste Schritt für eine Verbesserung wäre daher, die mehrmodige Gradientenindex-Faser gegen eine Singlemode-Faser auszutauschen. Um einen Eindruck zu vermitteln welche Verbesserungen in der Auflösung bereits aus dem Fasertausch resultieren können, wurden entsprechende Kurven berechnet. Betrachtet wurde hierbei lediglich der Bereich um 629 nm. Hier finden sich die zu erwartenden Maxima von 627,5 und 630,8 nm aus den Spektren (Abbildung 4.14a). Er entspricht in den zeitaufgelösten Messungen dem äquivalente Bereich um 0 ns. In der Literatur finden sich bei hoher Auflösung in diesem Bereich vier mögliche Maxima [124, S. 920 ff.], welche auch zur Berechnung der in Abbildung 4.16 dargestellten Kurven verwendet wurden. Da sich die Intensitäten bei unterschiedlichen Anregungswellenlängen leicht verändern, wurde die absolute Höhe der einzelnen Maxima durch Vorgabe der Höhen aus den Messdaten eines hochaufgelösten Spektrums ermittelt. Für die Berechnung der Funktionen wurde eine Summe von vier Gaussfunktionen benutzt, siehe Gleichung 4.1. Die Daten der zugehörigen Koeffizienten können Tabelle 4.3 entnommen werden.

Tabelle 4.3: Koeffizienten für die Berechnung der Auflösung bei Einsatz einer Singlemode-Faser. Übersicht der Koeffizienten aus Gleichung 4.1 der in Abbildung 4.16 dargestellten Gaußfunktion. Es wurde angenommen, dass eine Halbwertsbreite von 32,7 ps ( $w_i = 0,0139$ ) bei Verwendung einer Singlemode-Faser erreicht werden kann. Zum Vergleich sind ebenfalls die Koeffizienten der Berechnung für eine Zeitauflösung und 47 ps ( $w_i = 0,02$ ), wie dies aus den Messungen hervorgeht, gegeben.

	<b>A</b>	<b><math>x_c</math></b>	<b><math>w_{32,7 \text{ ps}}</math></b>	<b><math>w_{47 \text{ ps}}</math></b>
<b>Gaußfunktion 1</b>	1	-0,0199	0,0139	0,02
<b>Gaußfunktion 2</b>	0,91272	0,0204	0,0139	0,02
<b>Gaußfunktion 3</b>	0,32952	0,00865	0,0139	0,02
<b>Gaußfunktion 4</b>	0,05044	0,11373	0,0139	0,02

$$y = y_0 + \sum_1^4 A_i \cdot \exp\left(-\frac{(x - x_{c,i})^2}{2w_i^2}\right) \quad (4.1)$$

Der zeitliche Abstand Maxima auf der x-Achse wurde durch Abgleich zwischen Literatur und Messdaten mit anschließender Umrechnung durch Gleichung 2.12 bestimmt und mit einem Normierungsfaktor von 2/3 multipliziert. So ergaben sich bei einer zeitlichem Auflösung des Systems von etwa 47 ps die in Abbildung 4.16 dargestellte blaue Kurve. Um nun die zeitliche Auflösung von 37,2 ps zu berechnen, wurde der Wert für von  $w = \sigma = 0,02$  auf 0,0139 angepasst. Diese Kurve ist in rot dargestellt. Klar erkennbar ist hier die bereits vorab erwähnte Verbesserung in der Auflösung.

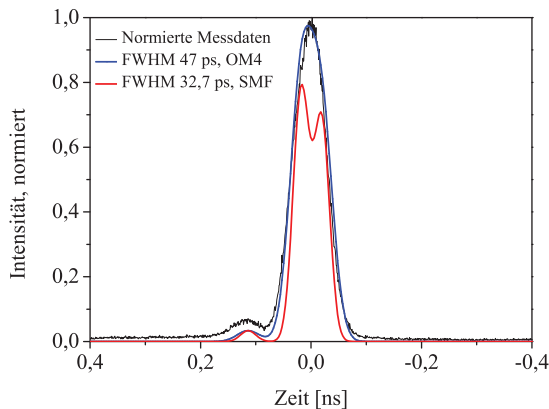


Abbildung 4.16: Berechnung für die mögliche Auflösungsverbesserung durch Einsatz einer Singlemode-Faser. Die Berechnung wurde im Bereich der verschmolzenen CH-Streckschwingung durchgeführt. Angenommen wurden mögliche Auflösungen des Gesamtsystems von 32,7 ps wie sie beim Einsatz einer Singlemode-Faser zu erwarten ist, und 47 ps wie sie bei den Messungen erreicht wurde.

Durch die Verwendung der Singlemode-Faser kann nur ein kleiner Anteil des Streulichts gesammelt werden. Dies ist jedoch für die Messung an sich unerheblich. Die minimale Größe, die auf die Detektorebene abgebildet werden kann, ist der Kerndurchmesser. Wird eine der Singlemode-Faser eingesetzt, besitzen minimaler Fokussdurchmesser und der Detektor etwa die gleiche Größe. Damit wird zwar sehr wenig Licht gesammelt, dieses dafür aber effizient auf den Detektor fokussiert. Im Endeffekt sollte die Zählrate daher nahezu identisch bleiben. Bei weiterer Verlängerung der Faser würde man hier die vollständige Trennbarkeit der beiden Raman-Banden erreichen.

## 4.2 Diskussion der Ergebnisse

Prinzipiell ist die heutige Spektrometertechnik weit ausgereift und ermöglicht Wellenlängenauflösungen von 1 nm und weniger [125]. Auch die Messzeiten haben sich aufgrund der immer besser werdenden Detektoren und Kamerachips stark verringert. Mittlerweile ist es möglich Raman-Spektren binnen weniger als einer Sekunde aufzuzeichnen. Je kürzer die Messdauer, desto schlechter ist die Auflösung sowie das Signal-zu-Rausch-Verhältnis.

Dennoch herrscht nach wie vor Bedarf an der Weiterentwicklung und der Erforschung neuer Detektorkonzepte. Der Trend hin zu kürzeren Messdauern zur Erhöhung des Probendurchsatzes ist nach wie vor ungebrochen. Durch die höheren Ansprüche bezüglich Auflösung, Messdauer und Effizienz, sind heutige Spektrometer zum Großteil sehr komplexe und mechanisch empfindliche Systeme. Der Ansatz, die mechanisch empfindlichen optischen Gitter durch eine Faser zu ersetzen und die spektrale Auflösung durch die intrinsischen Fasereigenschaften zu ermöglichen, ist allerdings nicht gänzlich neu.

Bereits Ende der 70er Jahre wurde gezeigt, dass sich Fasern zur Dispersion von Licht eignen und damit der Weg in die Spektroskopie offen steht. Allerdings wurde jedoch eher an die *Time-of-Flight* (TOF)-Spektroskopie (Flugdauer) gedacht wurde [110]. Auch damals wurden zeitaufgelöste Messungen nach dem bei uns verwendeten TCSPC-Prinzip durchgeführt. Allerdings waren die Ergebnisse entsprechend der damaligen Messtechnik nicht so hochauflösend.

Die Weiterentwicklung dieses Konzepts für die Ramanspektroskopie mit modernen Mitteln und deutlich verbesserter Zeitauflösung wurde 2011 auf der CLEO (Conference of Laser Science to Photonic Applications) vorgestellt und im zugehörigen Journal der OSA (Optical Society of America) publiziert [126]. Der dort verwendete Photomultiplier bot eine Auflösung von 150 ps, die 1km lange Multimode-Faser wurde für eine prognostizierte Auflösung von  $15 \text{ cm}^{-1}$  ausgewählt. Die Anregungswellenlänge ist identisch mit der bei unseren Experimenten eingesetzten (532 nm). Trotz der schlechteren Zeitauflösung des Detektors wird eine höhere spektrale Auflösungen im Experiment erreicht. Dies lässt sich prinzipiell durch die deutlich größere Faserlänge erklären, die das Signal auf einen Zeitbereich von 40 ns aufzieht. Das ist aufgrund der geringen Repetitionsrate von nur 1 MHz möglich. Die dort gezeigten, zeitlich aufgelösten Spektren lassen keinerlei negative Effekte durch intermodale Dispersion

erkennen. Natürlich wären die Auswirkungen durch die geringere Zeitauflösung (etwa Faktor 5 schlechter als bei dem in dieser Arbeit eingesetzten SNSPD-System) und intermodale Dispersion auch erst bei deutlich größerer Faserlänge zu beobachten. Allerdings sollte dies bei der verwendeten Länge von 1 km ( $> 10$ -fache Länge) der Fall sein. In der Publikation sind keinerlei detaillierte Informationen zur Faser enthalten, die Aufschluss geben könnten weshalb das Signal nicht dadurch beeinflusst wird. Auch wird intermodale Dispersion an sich gar nicht erwähnt. Dennoch zogen die Forscher offensichtlich denselben Schluss, dass der Einsatz einer Singlemode-Faser sowie eines höher auflösenden Detektors das Ergebnis deutlich verbessern kann.

Bei der CLEO 2012 wurde von der gleichen Gruppe um G.I. Petrov eine Weiterentwicklung des Messkonzepts vorgestellt. Im Gegensatz zu den Experimenten 2011 wurde der Detektor gegen eine einzelphotonenempfindliche Lawinenphotodiode mit einer Zeitauflösung von 50 ps ausgetauscht. Auch die Faser wurde auf eine Singlemode-Faser abgeändert [127]. Deren Länge wurde auf 100 m festgelegt (spektrale Auflösung bei  $10 \text{ cm}^{-1}$ ). Auch hier finden sich keinerlei zusätzliche Angaben zur verwendeten Faser oder Typbezeichnungen der Detektoren. Die Ergebnisse zeigen, dass das Spektrum ebenfalls gut wiedergegeben wird, wobei das Signal zeitlich auf nur etwa 12 ns gespreizt wird. Die Auflösung ist zudem noch etwas höher. Dies zeigt eindeutig, dass sich die verbesserte Zeitauflösung auf das Gesamtsystem auswirkt.

Als letzte Weiterentwicklung dieses Systems wurde 2013 in Zusammenarbeit mit weiteren Kollegen in einer Konferenzpublikation der *Advanced Biomedical and Clinical Diagnostic Systems XI* die neuesten Ergebnisse vorgestellt [122]. Auch hier kamen kommerzielle Komponenten zum Einsatz. Neben einer höheren Repetitionsrate von 2 MHz wurde auch der Detektor gegen den hochauflösendsten kommerziell erhältlichen Photomultiplier von Hamamatsu eingetauscht. Der R3809U-50 bietet eine Zeitauflösung von  $\leq 25$  ps. Die Faserlänge (Fibercore Inc., Model SM600) betrug 400 m was zu einer Signalaufspreizung von ebenfalls etwa 12 ns führte. Leider wurde nicht die volle Auflösung der TCSPC-Messelektronik ausgenutzt (Slot-Breite von knapp 15 ps).

Die Autoren sprachen auch von der möglichen Unterdrückung der Fluoreszenz durch die eingesetzte Messmethodik. Generell ist die Annahme, dass die sich Fluoreszenz und Raman-Streuung gleichzeitig bei Aufnahme des Spektrums separieren lassen, nicht korrekt. Die Fluoreszenz befindet sich im gleichen spektralen Bereich wie der Streuprozess. Durch die Faser erfahren die Fluoreszenzanteile ebenso Dispersion, was zu einem weiterhin vorhandenen Fluoreszenzuntergrund in den Messungen führt. Eine Separation von Fluoreszenz und Raman-Banden wird dadurch nicht vereinfacht, sondern zum Teil erschwert. Ein solches Beispiel findet sich in Abbildung 4.17. Im Spektrum erkennt man, dass die Probe sowohl Raman-Streuung als auch Fluoreszenz aufweist. In der zeitaufgelösten Messung ist deutlich zu sehen, wie sich die Passage der Faser auf das Signal auswirkt. Die Raman-Banden werden ihrer Wellenlänge nach verzögert. Ebenso werden jedoch die Fluoreszenzanteile durch die Faser verzögert. Die Raman-Banden sind, wenn die Intensität hoch genug ist, als zusätzliche Peaks auf dem ebenso verzögerten Fluoreszenzuntergrund zu erkennen.

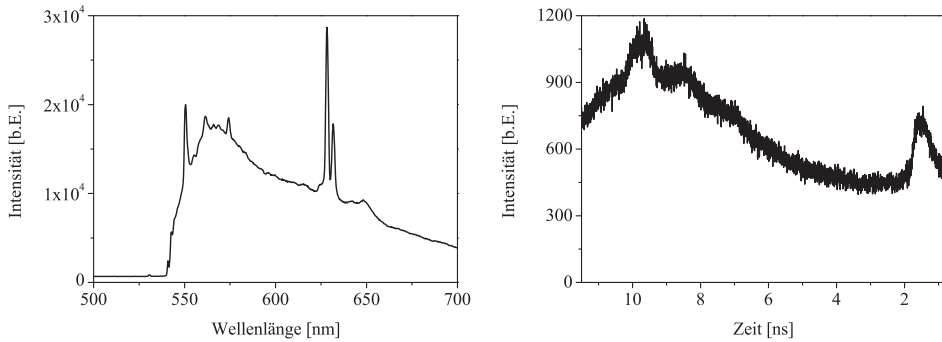


Abbildung 4.17: Spektrum (links) und zeitaufgelöste Messung (rechts) von DMSO (Dimethylsulfoxid).

So kann genauso wenig ein zuverlässiges Raman-Spektrum erstellt werden als bei der klassischen Spektrometermessung, da sich hier ebenfalls Fluoreszenz und Raman-Anteile überlagern.

Im Vergleich zu den Ergebnissen von G.I. Petrov zeigen SNSPD ein erheblich besseres Zeitauflösungsvermögen von bis zu 2,16 ps (Abschnitt 3.3.3). Damit ist der SNSPD nach aktuellem Stand der Detektor mit der höchsten erreichbaren intrinsischen Zeitauflösung. Für die Verwendung der TCSPC-Technik sind dies ideale Voraussetzungen.

### 4.3 Optimierungspotential

Zeitaufgelöste Spektroskopie mit SNSPD hat viel Potential zur Weiterentwicklung. Es wurden neben den notwendigen Vorarbeiten zweierlei konkrete Einsatzmöglichkeiten in der Spektroskopie vorgestellt. Zum Einen ist es möglich mit dem Messsystem Streulicht und unerwünscht auftretende Fluoreszenz größtenteils zu trennen (Abschnitt 4.1.2). Im Signal verbleibt nur ein kleiner Anteil, der bereits während des Streuprozesses vorhanden ist. In diesem Falle gilt: je besser die Zeitauflösung des Systems ist, desto besser ist die Separierung bzw. die Fluoreszenzunterdrückung. Ist zeitgleich die Wellenlängenseparation gewünscht oder benötigt, muss bei dieser Methodik weiterhin ein Monochromator eingesetzt werden. Zum Anderen ist es möglich mit einer langen Faser als dispersives Element die zeitaufgelöste Messung über eine Kalibrierfunktion in ein Spektrum zu übersetzen. Durch intrinsische Prozesse des SNSPD sind sicherlich Grenzen gesetzt was erreichbare Zeitauflösung angeht [16]. Die Steilheit Anstiegsflanke beeinflusst die minimal erreichbare Zeitauflösung. Natürlich müssen hierbei jedoch auch die restlichen elektronischen Komponenten wie Verstärker und die Ausleseelektronik sowie deren Bandbreitenbegrenzungen bedacht werden. Daher sollen an dieser Stelle nun einige Ansätze diskutiert werden anhand derer man das SNSPD-basierte System deutlich verbessern kann. Damit könnte das Gesamtsystem soweit optimiert werden, dass es im

Vergleich zu bereits erhältlichen Produkten auf dem Markt der Raman-Spektroskopie deutlich konkurrenzfähiger wird. Hierzu werden die möglichen Teilsysteme einzeln betrachtet, mögliche Änderungen vorgeschlagen und deren Auswirkungen aufgezeigt.

### 4.3.1 SNSPD

Als zentrales Element des gesamten Systems ist der SNSPD das ausschlaggebende Bauteil. Das Zeitaufklärungsvermögen dieses Detektortyps ist unerreichbar von jeglichem kommerziellen Detektor. Selbst in dem bisher für die Untersuchungen verwendeten Standard-Design, als recht kleiner Mäander einer aktiven Fläche von nur  $4 \times 4$  bzw.  $5 \times 5 \mu\text{m}$  sind die Ergebnisse beeindruckend. Dennoch kann durch ein passendes Design der Detektor weiter optimiert werden. In der Dissertationsschrift von Frau Henrich (KIT Karlsruhe, [24]) wird bereits beschrieben, dass Stromüberhöhung an den Umkehrpunkten der typischen Mäanderstruktur zu einem reduzierten kritischen Strom der Gesamtstruktur führt. Dies wiederum führt den Ergebnissen aus Kapitel 3 zufolge zu einem erhöhten TJ. Da dies für die in dieser Arbeit vorgestellten Anwendungsgebiete kontraproduktiv ist und der Hauptvorteil des SNSPD nicht ausgenutzt werden kann, gilt es den kritischen Strom so hoch wie möglich zu wählen. Der höchste kritische Strom lässt sich bei konstanter Schichtdicke, wie auch in Frau Henrichs Dissertation beschrieben (S. 99 ff.), bei einer geraden Struktur erzielen. Da so keine effektive Detektorfläche geschaffen werden kann und die bislang sehr geringe Detektionseffizienz dadurch noch weiter reduziert wird, muss ein Kompromiss gefunden werden.

Eine Möglichkeit hierfür wäre eine Spiralstruktur, da zwei positive Eigenschaften vereint werden. Zum Einen gibt es keine abrupten  $180^\circ$ -Wendungen, sondern einen nahezu konstanten Winkel des Leiters. Zum Anderen ist die entstehende effektive Fläche rund, was besser als die quadratische Mäandergrundfläche zur Abstrahlcharakteristik einer Faser passt. Die Effizienz kann auf diese Weise auf fast 30 % enorm gesteigert werden für Licht im sichtbaren Bereich ([24], S. 145 ff.). Allerdings sollte man festhalten, dass die Schichtdicken hier sehr dünn gewählt wurden, um diese Detektionseffizienzen zu erzielen. Das widerspricht jedoch unserer Forderung nach einem möglichst hohen kritischen Strom für die bestmögliche Zeitaufklärung. Für die zukünftige Weiterentwicklung ist für das Spiralkonzept demnach eine Abwägung der zwischen Zeitaufklärung und Detektionseffizienz vorzunehmen.

Als weitere Optimierung des Spiral-Designs bei dem eine Monolage NbN verwendet wurde und in der Mitte die Drehrichtung der Spirale gewechselt wird, wäre eine Doppellage NbN mit einer dicken Isolationsschicht. Die Vorteile lägen in diesem Falle darin, dass in der Mitte kein "blinder" Bereich entsteht, der für die Einzelphotonendetektion unempfindlich ist. Da die Intensität des Lichts in einer Singlemode-Faser dort maximal ist, Auch ließe sich dadurch die Reduktion der DE durch die benötigte dickere Schicht teilweise kompensieren. In diesem Falle wäre die Stromrichtung konstant, sodass durch ein geringes, zusätzlich angelegtes und passend ausgerichtetes Magnetfeld die Stromverteilung im Leiter weiter homogenisiert werden kann, ohne die DE zu beeinflussen [128, 129]. Allerdings müsste bei einem Mehrlagensystem beachtet werden, dass die Schichten als Coplanarleiter für die HF-Auslese ausgelegt werden



müssen, was dann auch bei der Ausleseplatte berücksichtigt werden muss. Für die zusätzliche Erhöhung der Detektionseffizienz wäre in diesem Zusammenhang auch der Einsatz von optischen Kavitäten denkbar, wobei man damit einen Teil der Breitbandigkeit des Detektors zwangsläufig verlieren würde. Auch die Auswirkung auf die Zeitauflösung des Chips durch die Mehrfachreflexionen könnte nicht vernachlässigbare Werte erreichen.

Ein weiterer Ansatz wäre die direkte Integration des SNSPD auf einen optischen Wellenleiter, wobei das supraleitende Material in einer U-Form auf entlang der Längsachse auf den Leiter aufgebracht wird. Hierdurch wird eine große Wechselwirkungslänge über das evaneszente Feld der Lichtwelle im Wellenleiter geschaffen. Dadurch entsteht eine feste Einheit aus Detektor und Wellenleiter, sodass alle Photonen, die einmal in eingekoppelt sind auch mit dem Detektor interagieren können. Hierdurch können Detektionseffizienzen von über 90 % für sehr energiearme Photonen im Infrarotbereich erzielt werden [4]. Allerdings wurden solche Konzepte bislang nicht auf hohe Zeitauflösung optimiert. Eine Abwandlung dieser Idee ist die Abscheidung einer supraleitenden NbN-Schicht auf einer SiN-Membran [130]. So kann der Detektor separat hergestellt, getestet und anhand geeigneter Eigenschaften für den entsprechenden Anwendungsbereich auf einen Wellenleiter aufgebracht werden. Die Detektion der Photonen findet ebenfalls über das evaneszente Feld statt. Allerdings sind die Ergebnisse noch nicht mit der direkten Abscheidung auf der Faser zu vergleichen. So werden beispielsweise mit diesem Konzept derzeit eine Detektionseffizienz von bis zu 52 % erreicht. Der TJ liegt üblicherweise bei etwa 50 ps. Dennoch ist dieses Konzept vielversprechend. Der optische Aufbau für die Experimente und die Herstellung des Detektors können separat erfolgen. Dadurch ergibt sich eine große Flexibilität für die separate Optimierung der beiden Komponenten.

Neben den bisher allgemeinen Überlegungen, ist ein weiterer Aspekt für den Einsatz in der Spektroskopie maßgeblich- eine möglichst hohe DE. Hierbei ist vor allem die Materialwahl ausschlaggebend. Eine mögliche Wahl könnte auf das Material Tantal Nitrid (TaN) fallen [131]. Im Vergleich zu einer ähnlich dicken Schicht ( $\sim 5$  nm) aus NbN bei der sich die Detektionseffizienz im einstelligen Prozentbereich bewegt [106], erreichen die SNSPD aus TaN Effizienzen von um die 20 %. Die Stromdichte und damit auch der auch für unsere Zwecke wichtige Parameter des kritischen Stroms ist im Vergleich halbiert. Bei NbN etwa können etwa  $8 \text{ MA/cm}^2$  für 5 nm dicke NbN-Schichten erreicht werden. Bei TaN sind es etwa  $4 \text{ MA/cm}^2$ . Die bereits vorgestellten Möglichkeiten zur Verbesserung der Eigenschaften von NbN sind auch auf TaN anwendbar wodurch diese Detektoren weiter für die Spektroskopie optimiert werden könnten. Dennoch müsste zunächst in erster Linie die Zeitauflösungsfähigkeit dieses Materials in einer Referenzgeometrie getestet werden, um sicherzustellen, dass der Aufwand für die Weiterentwicklung gerechtfertigt ist.

### 4.3.2 Elektronik

Seitens der Elektronik gibt es einige Komponenten, die verbessert bzw. an die Anwendung angepasst werden können. Zum Einen kann das Layout des Bias-Tee bzw. der Auslesepfad



besser HF-technisch angepasst werden, sodass zwischen Detektor und SMA-Stecker keine Krümmungen auftreten. Dadurch treten weniger Reflexionen auf der Leitung bei einer Detektion auf. Zusätzlich können im eingekühlten Zustand durch geeignete Filter in der Zuleitung des Bias-Stromes weitere mögliche Störquellen minimiert werden. Beide Maßnahmen führen zu einem sehr stabilen Arbeitspunkt, was den Dauereinsatz des SNSPD möglich macht.

Die beiden nächsten Komponenten müssen zusammen betrachtet werden, da Änderungen nur in Kombination zur Verbesserung des Systems beitragen können. Wie bereits zuvor erwähnt, werden für einen kleinen TJ möglichst steile Flanken bei einer Einzelphotonendetektion benötigt. Hierfür ist natürlich die intrinsische Impulserzeugung des Detektors in erster Linie zuständig. Bei der Weiterverarbeitung sind die elektronischen Komponenten ausschlaggebend – namentlich die Verstärkerstufe und die Eingangsbandbreite der Ausleseelektronik. Derzeit sind die effektive Bandbreite von 2,2 GHz der eingesetzten Verstärker und die Eingangsbandbreite der TCSPC-Elektronik (zeitliche Mindestbreite nach Herstellervorgaben  $400 \text{ ps} \approx 2,2 \text{ GHz}$ ) aufeinander angepasst. Eine zu geringe Verstärkerbandbreite verschlechtert den rein elektronischen TJ deutlich (Abschnitt 3.3.2). Durch eine größere Bandbreite von Verstärkerstufe und Ausleseelektronik könnte die intrinsisch deutlich steilere Detektorflanke, die zur Zeitmessung bei der TCSPC-Methodik verwendet wird, besser ausgenutzt werden. Dadurch könnte der TJ des Gesamtsystems verringert werden. Wichtig ist jedoch, dass beide Komponenten eine aufeinander abgestimmte Bandbreite besitzen, um diesen Effekt nutzen zu können. Daher ergibt das Anpassen nur einer Komponente wenig Sinn. Positiverweise hat Hersteller der TCSPC-Elektronik (Becker und Hickl) bereits zusätzlich Maßnahmen zur Verringerung des TJ getroffen, sodass eine Zeitauflösung von 7 ps durch die Elektronik erreicht werden kann. Hilfreich könnte jedoch eine höhere Empfindlichkeit des Detektoreingangs an der Elektronik sein, sodass das Signal weniger vorverstärkt werden muss und eine Verstärkerstufe eingespart werden kann. Dadurch könnte die Signalbandbreite nach dem Verstärken auf 3 GHz erhöht werden. Ebenso wichtig ist eine sehr feine Auflösung des analogen Signals, wofür möglichst viele Quantisierungsstufen in einem kleineren Bereich als bisher benötigt werden (derzeitiger Bereich  $|0 - 500| \text{ mV}$ ).

Die vorgeschlagenen Änderungen können zu einer weiteren Verringerung des TJ des Gesamtsystems führen. Jedoch müssen einige Änderungen in Zusammenarbeit mit dem Elektronikhersteller zusammen erfolgen. Daher ist eine eindeutige Aussage was diese Verbesserungen zahlenmäßig bewirken können an dieser Stelle nicht möglich.

### 4.3.3 Kryogenes System

Optimierungsmöglichkeiten sind auch beim kryogenen Messsystem gegeben. Die Verbesserungen beziehen sich nicht nur auf die weitere Verbesserung des TJ, sondern auch auf die bessere Handhabung durch nicht speziell im Umgang mit kryogenen Substanzen geschultes Personal. Um dem Messsystem beim durchschnittlichen derzeitigen Anwender Akzeptanz zu verschaffen, muss der Übergang zu einem trockengekühlten, geschlossenen System erfolgen [22, 23]. Der derzeitige Betrieb mit flüssigem Helium ist für einen Laien nicht ungefährlich

und zudem teuer. Auch muss die gesamte Logistik zur Heliumversorgung sichergestellt sein, was den mobilen Einsatz ebenso schwierig gestaltet. Idealerweise wird bei einem Pulsrohrkühler nur ein Anschluss an das Stromnetz benötigt. Zudem werden in diesen Systemen ebenso Temperaturen von etwa 3,5 K erreicht, was für den Betrieb von NbN-SNSPD ausreichend ist. Die etwas geringere Temperatur als beim bisherigen System führt ebenso dazu, dass der kritische Strom erhöht und somit auch der TJ reduziert werden kann [55].

Ebenso sollte die optische Kopplung zwischen Faser und Sensor optimiert werden. Dies führt zu einer geringeren Komplexität des Messsystems, da kein Piezo-Versteller mehr benötigt wird, um die Fokussieroptik über dem Detektor zu positionieren. Damit lässt sich auch die nötige Baugröße der Kaltstufe deutlich reduzieren. Durch den Einsatz einer Singlemode-Faser passen der Durchmesser des Faserkerns sowie die aktive Detektionsfläche sehr gut zusammen. So kann durch eine geeignete selbstjustierende Positionierung [44, 45] beim Einkühlen und entsprechende Klebetechnik die Faser direkt mit dem Detektor verbunden werden. Auch denkbar wäre die bereits angesprochene Lösung durch Integration des SNSPD auf dem Wellenleiter.

## 5 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden das zeitliche Auflösungsvermögen von supraleitenden Einzelphotonenzählern auf der Basis von NbN-Dünnschichten und deren Einsatzmöglichkeiten in der Spektroskopie untersucht.

Der erste Teil widmet sich der Untersuchung der SNSPD, wobei der Schwerpunkt auf der Minimierung der zeitlichen Auflösung liegt. Dafür wird der SNSPD in ein Auslesesystem integriert wodurch sich zusätzliche Randbedingungen ergeben. Der SNSPD kann aufgrund des geringen Signalpegels nicht direkt gemessen werden, sodass Verstärker zum Einsatz kommen müssen. Die eingesetzte Verstärkerkette hat bei zu geringer Bandbreite Einfluss auf die erreichbare Zeitauflösung des Gesamtsystems. Durch Anpassung zwischen Verstärker- und Eingangsbandbreite der TCSPC-Ausleseelektronik können optimale Voraussetzungen zur Messung des *timing-jitters* geschaffen werden.

Das SNSPD-Design richtete sich nach den zu untersuchenden Aspekten. Zunächst wurde die Schichtdicke der SNSPD mit 7-8 nm etwas höher als üblich gewählt, um mit möglichst wenigen Verstärkerstufen auszukommen. Betrachtet wurden zwei Probensets, welche sich hinsichtlich ihrer grundlegenden Geometrie unterschieden. Das erste bestand aus unterschiedlichen, auch aus der Literatur bekannten, Mäandern. Für die zweite Designvariante wurde ein gerader Streifen zugrunde gelegt, sodass der Strom ohne *current-crowding*-Effekt fließen kann. Die kinetische Induktivität ( $L_{\text{kin}}$ ) wurde durch das Parallelschalten von Teilabschnitten reduziert, während die aktive Fläche konstant gehalten wurde. Da  $L_{\text{kin}}$  maßgeblich zur Zeitkonstante der SNSPD beiträgt, sind SNSPD mit geringem  $L_{\text{kin}}$  schneller. Das heißt, dass die erzeugten SNSPD-Pulse steilere Flanken besitzen, was sich positiv auf die Zeitauflösung auswirken sollte. Mit der Parallelschaltung verdoppelte bzw. verdreifachte sich auch in etwa der mögliche kritische Strom.

Entgegen den Erwartungen zeigte sich bei der Charakterisierung der Mäander-Parallelgeometrien trotz der verringerten kinetischen Induktivität und des höheren Biastroms keine deutlich höhere Zeitauflösung. Während das Histogramm des Einzelstreifens ( $s$ ) relativ symmetrisch ist, weisen die Histogramme der Parallelstrukturen einen ausgedehnten Signalabfall nach dem Hauptmaximum auf. Die Ausprägung dieses Signalabfalls verstärkt sich von der 2-fach (2p) zur 3-fach (3p) Parallelschaltung. Dies könnte dadurch erklärt werden, dass die Zeitkonstanten von elektrischer und thermischer Relaxation vergleichbare Werte aufweisen. Ebenso könnte das kaskadenartige Schalten zu einer Unterdrückung des Ordnungsparameters führen. Die unter dieser Annahme bestimmten Zeitkonstanten für die Relaxationszeit der Energielücke  $\Delta\tau$  liegen jedoch laut Literatur in einem Zeitbereich, der etwa 10-mal höher ist, als sich aus den Messungen dieser Arbeit entnehmen lässt. Beim Vergleich mit den Er-

gebnissen der geraden Geometrien von s-, 2p- und 3p-Variante zeigen sich dort hingegen nahezu ideal symmetrische Histogramme. Dies legt den Schluss nahe, dass es sich bei dem nachgewiesenen Effekt eher um den Einfluss der Mäandergeometrie handeln könnte als um einen rein physikalischen Effekt. Zudem zeigt sich vor allem bei den Parallelstreifen ein deutlicher Unterschied zwischen dem erreichbaren kritischen Strom mit und ohne Beleuchtung. So können bei 3p-Variante beispielsweise nur noch knapp 88 % (3p-Mäander) bzw. 78 % (3p-Brücke) des  $I_c$  ohne Beleuchtung erreicht werden. Die beste Zeitauflösung ist vom maximal erreichbaren Biasstrom  $I_b$  und damit von  $I_c$  abhängig. Dem Anschein nach führt das reduzierte  $I_c$  auch zu der Verschlechterung der Zeitauflösung.

Die geraden Strukturen erlaubten auch eine Untersuchung der positionsabhängigen Zeitauflösung. Um die aktive Fläche konstant zu halten, wurden bei den geraden Geometrien die Längen bei der Parallelschaltung entsprechend angepasst. Die Ortsabrasterung der längsten Struktur (80  $\mu\text{m}$ ) zeigt, dass der Einfluss von Laufzeitunterschieden innerhalb des supraleitenden Streifens nahezu vernachlässigbar ist. Somit spielt es bei den in dieser Arbeit verwendeten Längen für die Zeitauflösung keine Rolle, an welcher Stelle des Detektors das Photon absorbiert wird.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die beste Zeitauflösung mit dem geraden Einzelstreifen, der den höchsten kritischen Strom aufwies, erreicht. Mit diesem SNSPD konnte eine minimale Zeitauflösung des Gesamtsystems von 7,23 ps erzielt werden. Der *timing jitter* des Detektors trägt in diesem Fall noch maximal 2,16 ps zum Gesamtsystemjitter bei. Es handelt sich hierbei um die beste Zeitauflösung, die bislang weltweit mit einem SNSPD realisiert werden konnte.

Ein weiterer wichtiger Aspekt für die dauerhafte Nutzung von SNSPD ist, die Alterung der aktiven Schicht zu verhindern, da damit eine Verringerung von  $I_c$  einher geht. Dies wiederum zieht eine Verschlechterung der Zeitauflösung nach sich. Ein wichtiger Indikator für die Alterung ist eine messbare Erhöhung des Raumtemperaturwiderstands, was sich durch einen größeren Oxidanteil in den NbN-Schichten erklären lässt. Um die Alterung zu verhindern, muss eine Passivierung der aktiven NbN-Schicht erfolgen. Durch die Sauerstoffaffinität von NbN, können die üblicherweise verwendeten Oxide jedoch nicht eingesetzt werden. Ein mögliches Material für die Passivierung könnte Aluminiumnitrid sein.

Der zweite Teil der Arbeit legt den Schwerpunkt auf den praktischen Einsatz der SNSPD in der Spektroskopie. Im Bereich der Raman-Spektroskopie muss durch den kleinen Streuquerschnitt<sup>1</sup> mit geringen Signalpegeln bis hin zur Detektion von Einzelphotonen gerechnet werden. Die hochempfindlichen SNSPD stellen eine denkbare Alternative zu kommerziellen Detektoren auf Halbleiterbasis dar. Durch ihre Schnelligkeit und die extrem hohe mögliche Zeitauflösung bieten sie die Möglichkeit, die sehr schwache Raman-Streuung zu detektieren. In der Raman-Spektroskopie tritt, vor allem bei biologischen Proben, immer wieder starke Fluoreszenz auf. Diese liegt nicht nur im gleichen Wellenlängenbereich wie die zu erwartende

---

<sup>1</sup> Der Streuquerschnitt beschreibt in diesem Fall die Wahrscheinlichkeit der Streuung von einfallender Strahlung an Molekülen oder Atomen der zu untersuchenden Spezies.

Raman-Streuung, sondern ist in ihrer Intensität viel stärker ausgeprägt (etwa Faktor 1000). Dadurch kann eine Erfassung der Raman-Banden unmöglich werden.

Das erste mögliche Einsatzszenario ist, den SNSPD direkt für die nahezu vollständige Trennung zwischen Fluoreszenz und Raman-Streuung einzusetzen indem das gesamte Signal mittels TCSPC zeitlich aufgelöst wird. Die hohe Zeitauflösung erlaubt es, das unterschiedliche Zeitverhalten der beiden Signale auszunutzen. Der Streuprozess erfolgt instantan mit der Anregung. Die Fluoreszenz besitzt hingegen materialabhängige Zeitkonstanten für Aufbau und Abfall des Signals. Wird die Probe wie bei den TCSPC-Messungen gepulst angeregt, kann die Raman-Streuung zeitlich weitestgehend vom Fluoreszenzuntergrund getrennt werden. Durch Messung eines solchen Signals (Probe aus Cyclohexan mit Rhodamin 6g als Fluoreszenzkomponente) konnte gezeigt werden, dass das Messprinzip funktioniert. Je höher die erreichte Zeitauflösung des Systems ist, desto besser ist die Separierung bzw. die Fluoreszenzunterdrückung.

In einem weiteren Experiment konnte gezeigt werden, dass die eingesetzte optische Faser selbst als dispersives Element genutzt werden kann. Bereits bei einer Länge von einigen Metern erreichen die einzelnen Raman-Banden das Faserende zu unterschiedlichen Zeiten. Durch eine geeignete Kalibrierung des Systems, wie beispielsweise die Messung einer bekannten Probe mit Spektrometer und TCSPC, ist eine Umrechnung zwischen Laufzeiten und den in der Spektroskopie üblichen Wellenzahlen möglich. Somit kann durch die zeitaufgelöste Messung der Raman-Streuung indirekt das Spektrum ermittelt werden. Folglich kann mit SNSPD und TCSPC ein faserdispersives Raman-Spektrometer realisiert werden.

Allerdings ist eine parallele Wellenlängenseparation und Fluoreszenzunterdrückung durch zeitliche Auflösung nicht möglich. Die Fluoreszenz erstreckt sich über einen relativ großen Wellenlängenbereich von einigen hundert nm. Im Gegensatz zum Raman-Spektrum handelt es sich allerdings nicht um diskrete Banden, sondern um ein breitbandiges Spektrum. Dennoch gilt auch hier, dass alle in der Fluoreszenz enthaltenen Wellenlängen beim Faserdurchtritt unterschiedliche Laufzeiten erfahren. Es bildet sich dadurch ein zeitlich aufgelöster Fluoreszenzuntergrund, ähnlich dem der integralen Messung mit Spektrometer. Zur Wellenlängenseparation muss daher weiterhin ein Monochromator eingesetzt werden.

Bis ein auf SNSPD basierendes TCSPC-System konkurrenzfähig zu kommerziellen Spektrometern wird, müssen einige Schritte der Optimierung unternommen werden. Generell ist für potentielle Endnutzer eine möglichst einfache Handhabung wünschenswert. Dies kann durch die Integration des SNSPD in ein trockengekühltes System erreicht werden. Zwei weitere Aspekte stehen bei der Systemverbesserung besonders im Vordergrund: die spektrale Auflösung und eine hohe Systemdetektionseffizienz (SDE). Als erste Maßnahme zur Verbesserung der spektralen Auflösung kann anstatt der Multimode-Faser, die für die ersten Experimente eingesetzt wurde, eine Singlemode-Faser verwendet werden. Ein weiterer Punkt ist, eine möglichst hohe zeitliche Auflösung des Gesamtsystems, die wiederum zu einer höheren spektralen Auflösung führt, zu erzielen.

Der SNSPD, der die besten Ergebnisse lieferte ist derjenige, der den höchsten kritischen Strom tragen kann und nur aus einer 100 nm schmalen und etwa 80  $\mu\text{m}$  langen, supraleiten-

den Brücke besteht. Hierdurch wird jedoch keine aktive Fläche geschaffen, die eine effektive Absorption eines Photons ermöglicht. Neben vielen anderen Ansätzen erscheint es daher am einfachsten, eine solche Detektorgeometrie direkt auf einem Wellenleiter zu integrieren. Über das evaneszente Feld des im Wellenleiter geführten Lichtes kann ein Photon entlang der gesamten Länge des SNSPD absorbiert werden. Dadurch steigert sich die Wechselwirkungslänge von nur einigen nm zu 80  $\mu\text{m}$  oder mehr. So können nachgewiesenermaßen DE bis nahezu 100 % erreicht werden. Die Ankopplung zwischen Faser und Wellenleiter muss so angepasst werden, dass die Verluste minimiert werden.

Zudem können auch seitens der Auslese Verbesserungen vorgenommen werden, wobei hier auf die Zusammenarbeit mit dem TCSPC-Elektronik-Hersteller Becker und Hickl zurückgegriffen werden kann. Durch eine größere Bandbreite von Verstärkerstufe und Ausleseelektronik kann die intrinsisch deutlich steilere Detektorflanke besser ausgenutzt werden. Der Abtastzeitpunkt lässt sich dadurch noch genauer bestimmen. Dies zieht ebenfalls eine Verbesserung der Zeitauflösung des Gesamtsystems nach sich.

# Veröffentlichungsliste

## Publikationen

### 2015

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, S. Dochow, I. Latka, A. Lukic, T. May, H.-G. Meyer, K. Il'in, M. Siegel, J. Popp, *Proof of concept of fiber dispersed Raman spectroscopy using superconducting nanowire single-photon detectors*, Opt. Express, OSA, 2015, 23, 5078-5090

### 2013

M. Hofherr, M. Arndt, K. Il'in, D. Henrich, M. Siegel, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, T. May, H.-G. Meyer, *Time-Tagged Multiplexing of Serially Biased Superconducting Single-Photon Detectors*, IEEE Transactions on Applied Superconductivity, PP, 99, 10.1109/TASC.2013.2245935

M. Ziegler., L. Fritzsich, J. Day, S. Linzen, S. Anders, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, H.-G. Meyer, *Superconducting niobium nitride thin films deposited by metal organic plasma-enhanced atomic layer deposition*, Superconductor Science and Technology, 2013, 26, 5, 10.1088/0953-2048/26/2/025008

### 2012

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, R. Grüner, M. Schubert, T. May, H.-G. Meyer, B. Dietzek, J. Popp, M. Hofherr, M. Arndt, D. Henrich, K. Il'in and M. Siegel, *Superconducting single-photon counting system for optical experiments requiring time-resolution in the picosecond range*, AIP, Rev. Sci. Instrum. 83, 123103, 2012, 10.1063/1.4769048

---

<sup>1</sup> Mädchenname: Toußaint bzw. engl. Toussaint.

## Konferenzbericht

### 2012

T. May, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, R. Gruener, M. Schubert, H.-G. Meyer, B. Dietzek, J. Popp, M. Hofherr, K. Il'in, D. Henrich, M. Arndt, M. Siegel, *Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors for Picosecond Time Resolved Spectroscopic Applications*, Proc. of SPIE vol. 8427, 84274B, 2012, 10.1117/12.970543

## Konferenzbeiträge

### 2016

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Ziegler, S. Goerke, H.-G. Meyer, K. Ilin and M. Siegel, *Properties of SNSPD fabricated by atomic layer deposition, ID: 137*, Applied Superconductivity Conference (ASC), Denver, USA (2016)

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Ziegler, H.-G. Meyer, K. Ilin and M. Siegel, *Properties of SNSPDs fabricated by atomic layer deposition*, Meeting on kryoelectronic devices (KRYO) 2016, Freyburg, Germany (2013)

### 2014

[INVITED] **J. Toussaint**<sup>1</sup>, T. May, H.-G. Meyer, S. Dochow, I. Latka, A. Lukic, J. Popp, *Fiber-dispersed Raman spectrometer based on Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors*, International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS), Jena, Germany (2014)

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, T. May, H.-G. Meyer, S. Dochow, I. Latka, J. Popp, M. Hofherr, K. Ilin, M. Siegel, *Investigation of SNSPDs for accurate timeresolved characterization of optical signals in the single-photon range*, Applied Superconductivity Conference (ASC), Charlotte, USA (2014)

### 2013

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, T. May, H.-G. Meyer, M. Hofherr, K. Il'in, M. Siegel, *Possibilities and limitations of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors for time-resolved measurements*, Meeting on kryoelectronic devices 2013, Bad Herrenalb, Germany (2013)



M. Hofherr, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Arndt, K. Ilin, T. May, H.-G. Meyer, M. Siegel, *Time-tagged multiplexing of a SNSPDs array for pulsed and cw applications*, Meeting on kryoelectronic devices 2013, Bad Herrenalb, Germany (2013)

T. Ortlepp, M. Hofherr, O. Brandel, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, K. Ilin, T. May, H.G. Meyer, M. Siegel, *The path towards multi-pixel arrays of superconducting detectors*, Biennial European Conference on Applied Superconductivity, Genova, Italy (2013)

M. Hofherr, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Arndt, K. Ilin, T. May, H.-G. Meyer, M. Siegel, *Time-tagged multiplexing of SNSPDs for multi-pixel arrays*, Biennial European Conference on Applied Superconductivity, Genova, Italy (2013)

T. Ortlepp, M. Hofherr, K. Ilin, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Siegel, *Single flux quantum circuit for SNSPD readout with improved sensitivity and scalability for integrated multi-pixel arrays*, 14th International Superconductivity Electronics Conference (2013)

T. Ortlepp, M. Hofherr, K. Ilin, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Siegel, *Single flux quantum readout for SNSPD: comparison between an event-triggered and a current-sampling concept*, 8th FLUXONICS RSFQ design workshop, Ilmenau, Germany (2013)

## 2012

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Schubert, T. May, H.-G. Meyer M. Hofherr, M. Arndt, D. Henrich, K. Il'in, M. Siegel, *Analysis of the limiting factors of the Time Resolution of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors*, Meeting on kryoelectronic devices 2012, Freudenstadt – Lauterbad, Germany (2012)

M. Hofherr, K. Il'in, D. Henrich, M. Arndt, M. Siegel, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, R. Grüner, T. May, M. Schubert, H.-G. Meyer, B. Dietzek, J. Popp, *Superconducting nanowire single-photon detectors for time correlated single photon counting*, FLIM, Saarbrücken (2012)

M. Hofherr, K. Il'in, D. Henrich, S. Wünsch, M. Siegel, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Schubert, T. May, H.-G. Meyer, R. Grüner, B. Dietzek, *Superconducting nanowire single-photon detectors for picosecond time resolved spectroscopic applications*, Applied Superconductivity Conference, Portland, USA (2012)

## 2011

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Hofherr, D. Henrich, K. Il'in, A. Semenov, H.-W. Hübers, H.-G. Meyer, M. Siegel, *Superconducting nanowire single-photon detectors: challenges in optimization of detector performance*, Meeting on kryoelectronic devices 2011, Autrans (Grenoble), France (2011)

M. Hofherr, D. Henrich, K. Il'in, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, A. Semenov, H.-W. Hübers, H.-G. Meyer, M. Siegel, *Superconducting nanowire single-photon detectors: challenges in optimization of detector performance*, 7th FLUXONICS RSFQ design workshop, Ilmenau, Germany (2011)

**J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Hofherr, M. Schubert, K. Il'in, D. Rall, S. Wunsch, M. Siegel, H.-G. Meyer, T. May, R. Grüner, D. Akimov, B. Dietzek, *Superconducting micro-bolometers and single photon detectors for spectroscopic applications*, Meeting on kryoelectronic devices 2011, Autrans (Grenoble), France (2011)

D. Rall, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Hofherr, S. Wunsch, K. S. Il'in, A. Semenov, H.-W. Huebers, M. Siegel, *Detection Efficiency and Cut-off Wavelength of NbN-SNSPD with Different Stoichiometry*, 14th International Workshop on low temperature detectors, Heidelberg, Germany (2011)

## 2010

D. Rall, **J. Toussaint**<sup>1</sup>, M. Hofherr, S. Wunsch, K. Il'in, A. Semenov, H.-W. Hübers, U. Lemmer and M. Siegel, *Improvement of SNSPD Detection Efficiency by Variation of NbN Chemical Composition*, Meeting on kryoelectronic devices, Zeuthen, Germany (2010)

# Literaturverzeichnis

- [1] G. N. Gol'tsman, A. D. Semenov, Y. P. Gousev, M. A. Zorin, I. G. Godidze, E. M. Gershenzon, P. T. Lang, W. J. Knott und K. F. Renk. "Sensitive picosecond NbN detector for radiation from millimetre wavelengths to visible light". In: *Superconductor Science and Technology* 4.9 (1991). DOI: doi:10.1088/0953-2048/4/9/020.
- [2] G. N. Gol'tsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams und R. Sobolewski. "Picosecond superconducting single-photon optical detector". In: *Applied Physics Letters* 79.6 (2001), S. 705–707. DOI: 10.1063/1.1388868. eprint: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1388868>. URL: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1388868>.
- [3] A. D. Semenov, P. Haas, H.-W. Hübers, K. Il'in, M. Siegel, A. Kirste, T. Schurig und A. Engel. "Vortex-based single-photon response in nanostructured superconducting detectors". In: *Physica C: Superconductivity* 468.7-10 (2008). Proceedings of the Fifth International Conference on Vortex Matter in Nanostructured Superconductors, S. 627–630. ISSN: 0921-4534. DOI: 10.1016/j.physc.2007.11.028.
- [4] W. Pernice, C. Schuck, O. Minaeva, M. Li, A. Goltsman G.N. and Sergienko und H. Tang. "High-speed and high-efficiency travelling wave single-photon detectors embedded in nanophotonic circuits". In: *Nature Communications* 3.1325 (2012). DOI: 10.1038/ncomms2307.
- [5] B. Baek, J. A. Stern und S. W. Nam. "Superconducting nanowire single-photon detector in an optical cavity for front-side illumination". In: *Applied Physics Letters* 95.19, 191110 (2009), S. 191110. DOI: 10.1063/1.3263715.
- [6] C. Schuck, W. H. P. Pernice, O. Minaeva, M. Li, G. Gol'tsman, A. V. Sergienko und H. X. Tang. "Matrix of Integrated Superconducting Single-Photon Detectors With High Timing Resolution". In: *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 23.3 (Juni 2013), S. 2201007–2201007. ISSN: 1051-8223. DOI: 10.1109/TASC.2013.2239346.
- [7] A. Pearlman, A. Cross, W. Słysz, J. Zhang, A. Verevkin, M. Currie, A. Korneev, P. Kouminov, K. Smirnov, B. Voronov, G. Gol'tsman und R. Sobolewski. "Gigahertz Counting Rates of NbN Single-Photon Detectors for Quantum Communications". In: *IEEE Transactions on applied Superconductivity* 15.2 (Juni 2005), S. 579–582. DOI: 10.1109/TASC.2005.849926.

- [8] B. S. Robinson, A. J. Kerman, E. A. Dauler, R. J. Barron, D. O. Caplan, M. L. Stevens, J. J. Carney, S. A. Hamilton, J. K. Yang und K. K. Berggren. “781 Mbit/s photon-counting optical communications using a superconducting nanowire detector”. In: *Optics Letters* 31.4 (Feb. 2006), S. 444–446. doi: 10.1364/OL.31.000444.
- [9] M. Tarkhov, J. Claudon, J. P. Poizat, A. Korneev, A. Divochiy, O. Minaeva, V. Seleznev, N. Kaurova, B. Voronov, A. V. Semenov und G. Gol’tsman. “Ultrafast reset time of superconducting single photon detectors”. In: *Applied Physics Letters* 92.24, 241112 (2008), S. 241112. doi: 10.1063/1.2945277.
- [10] J. Toussaint, R. Grüner, M. Schubert, T. May, H.-G. Meyer, B. Dietzek, J. Popp, M. Hofherr, M. Arndt, D. Henrich, K. Il’in und M. Siegel. “Superconducting single-photon counting system for optical experiments requiring time-resolution in the picosecond range”. In: *Review of Scientific Instruments* 83.12, 123103 (2012). doi: 10.1063/1.4769048.
- [11] R. H. Hadfield, M. J. Stevens, S. S. Gruber, A. J. Miller, R. E. Schwall, R. P. Mirin und S. W. Nam. “Single photon source characterization with a superconducting single photon detector”. In: *Optics Express* 13.26 (Dez. 2005), S. 10846–10853. doi: 10.1364/OPEX.13.010846.
- [12] R. H. Hadfield, J. L. Habif, J. Schlafer, R. E. Schwall und S. W. Nam. “Quantum key distribution at 1550nm with twin superconducting single-photon detectors”. In: *Applied Physics Letters* 89.24 (2006), S. 241129. doi: 10.1063/1.2405870.
- [13] R. H. Hadfield. “Single-photon detectors for optical quantum information applications”. In: *Nature Photonics* 3 (2009), S. 696–705. doi: 10.1038/NPHOTON.2009.230.
- [14] M. G. Tanner, S. D. Dyer, B. Baek, R. H. Hadfield und S. W. Nam. “High-resolution single-mode fiber-optic distributed Raman sensor for absolute temperature measurement using superconducting nanowire single-photon detectors”. In: *Applied Physics Letters* 99.20 (2011), S. 201110. doi: 10.1063/1.3656702.
- [15] M. J. Stevens, R. H. Hadfield, R. E. Schwall, S. W. Nam und R. P. Mirin. “Fast lifetime measurements of infrared emitters using a low-jitter superconducting single-photon detector”. In: *Applied Physics Letters* 89.031109 (Juli 2006), S. 3. doi: 10.1063/1.2221516.
- [16] K. Il’in, M. Lindgren, M. Currie, A. Semenov, G. Gol’tsman, R. Sobolewski, S. Cherednichenko und E. Gershenzon. “Picosecond hot-electron energy relaxation in NbN superconducting photodetectors”. In: *Applied Physics Letters* 76.3 (2000), S. 2752. doi: 10.1063/1.126480.
- [17] A. Engel, A. Semenov, H.-W. Hübers, K. Il’in und M. Siegel. “Fluctuations and dark count rates in superconducting NbN single-photon detectors”. In: *physica status solidi (c)* 2.5 (2005), S. 1668–1673. doi: 10.1002/pssc.200460809.
- [18] C. M. Natarajan, M. G. Tanner und R. H. Hadfield. “Superconducting nanowire single-photon detectors: physics and applications”. In: *Superconductor Science and Technology* 25.6 (2012), S. 063001. doi: 10.1088/0953-2048/25/6/063001.

- [19] F. Marsili, V. B. Verma, J. A. Stern, S. Harrington, A. E. Lita, T. Gerrits, I. Vayshenker, B. Baek, M. D. Shaw, R. P. Mirin und S. W. Nam. “Detecting single infrared photons with 93% system efficiency”. In: *Nature Photonics* 7 (2013), S. 210–214. doi: 10.1038/nphoton.2013.13.
- [20] O. Kahl, S. Ferrari, V. Kovalyuk, G. N. Goltsman, A. Korneev und W. H. P. Pernice. “Waveguide integrated superconducting single-photon detectors with high internal quantum efficiency at telecom wavelengths”. In: *Scientific Reports* 5 10941 (Juni 2015). doi: 10.1038/srep10941.
- [21] J. Toussaint, S. Dochow, I. Latka, A. Lukic, T. May, H.-G. Meyer, K. Il’in, M. Siegel und J. Popp. “Proof of concept of fiber dispersed Raman spectroscopy using superconducting nanowire single-photon detectors”. In: *Optics Express* 23.4 (Feb. 2015), S. 5078–5090. doi: 10.1364/OE.23.005078.
- [22] D. Liu, M. Dietrich, G. Thummes und Z. Gan. “Numerical simulation of a GM-type pulse tube cryocooler system: Part I. Characterization of compressors”. In: *Cryogenics* 81 (2017), S. 8–13. issn: 0011 – 2275. doi: 10.1016/j.cryogenics.2016.11.002.
- [23] D. Liu, M. Dietrich, G. Thummes und Z. Gan. “Numerical simulation of a GM-type pulse tube cryocooler system: Part II. Rotary valve and cold head”. In: *Cryogenics* 81 (2017), S. 100–106. issn: 0011-2275. doi: 10.1016/j.cryogenics.2016.11.006.
- [24] D. Henrich. *Influence of Material and Geometry on the Performance of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors*. KIT Scientific Publishing, 2013.
- [25] A. Engel und A. Schilling. “Numerical analysis of detection-mechanism models of superconducting nanowire single-photon detector”. In: *Journal of Applied Physics* 114.214501 (Dez. 2013). doi: 10.1063/1.4836878.
- [26] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity, 2nd Edition*. 2nd. Dover Publications, Inc., 1996, S. 454. isbn: 978-0-486-43503-9.
- [27] R. H. Hadfield und G. Johansson. *Superconducting Devices in Quantum Optics (Quantum Science and Technology)*. Hrsg. von R. H. Hadfield und G. Johansson. 1st ed. 2016. Springer, März 2016. isbn: 9783319240893. doi: 10.1007/978-3-319-24091-6. url: <http://amazon.com/o/ASIN/3319240897/>.
- [28] A. Semenov, A. Engel, H.-W. Hübers, K. Il’in und M. Siegel. “Spectral cut-off in the efficiency of the resistive state formation caused by absorption of a single-photon in current-carrying superconducting nano-strips”. In: *The European Physical Journal B* 47 (2005), S. 495–501. doi: 10.1021/j100535a016.
- [29] A. Engel, A. Semenov, H.-W. Hübers, K. Il’in und M. Siegel. “Fluctuation effects in superconducting nanostrips”. In: *Physica C: Superconductivity and its Applications* 444.1 (2006), S. 12–18. issn: 0921-4534. doi: 10.1016/j.physc.2006.05.079.
- [30] P. Seidel, Hrsg. *Applied superconductivity : handbook on devices and applications*. Encyclopedia of applied physics. Weinheim: Wiley-VCH, 2015. isbn: 978-3-527-41209-9. doi: 10.1002/9783527670635.

- [31] D. Henrich, S. Dörner, M. Hofherr, K. Il'in, A. Semenov, E. Heintze, M. Scheffler, M. Dressel und M. Siegel. "Broadening of hot-spot response spectrum of superconducting NbN nanowire single-photon detector with reduced nitrogen content". In: *Journal of Applied Physics* 112.7, 074511 (2012). doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4757625>.
- [32] A. Semenov, B. Günther, U. Böttger, H.-W. Hübers, H. Bartolf, A. Engel, A. Schilling, K. Il'in, M. Siegel, R. Schneider, D. Gerthsen und N. A. Gippius. "Optical and transport properties of ultrathin NbN films and nanostructures". In: *Physical Review B* 80.10 (5 Aug. 2009), S. 054510. doi: [10.1103/PhysRevB.80.054510](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.054510).
- [33] M. Hofherr. *Real-time imaging systems for superconducting nanowire single-photon detector arrays*. Bd. Band 016. KIT Scientific Publishing, 2014. ISBN: 978-3-7315-0229-6. doi: [10.5445/KSP/1000041279](https://doi.org/10.5445/KSP/1000041279).
- [34] A. J. Kerman, E. A. Dauler, J. K. W. Yang, K. M. Rosfjord, V. Anant, K. K. Berggren, G. N. Gol'tsman und B. M. Voronov. "Constriction-limited detection efficiency of superconducting nanowire single-photon detectors". In: *Applied Physics Letters* 90.10 (2007), S. 101110. doi: [10.1063/1.2696926](https://doi.org/10.1063/1.2696926).
- [35] A. Engel, A. Semenov, H. W. Hübers, K. Il'in und M. Siegel. "Superconducting single-photon detector for the visible and infrared spectral range". In: *Journal of Modern Optics* 51.9-10 (2004), S. 1459–1466. doi: [10.1080/09500340408235285](https://doi.org/10.1080/09500340408235285).
- [36] K. K. Likharev. "Superconducting weak links". In: *Rev. Mod. Phys.* 51 (1 Jan. 1979), S. 101–159. doi: [10.1103/RevModPhys.51.101](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.51.101).
- [37] M. Hofherr, D. Rall, K. S. Ilin, A. Semenov, N. Gippius, H.-W. Hübers und M. Siegel. "Superconducting nanowire single-photon detectors: Quantum efficiency vs. film thickness". In: *Journal of Physics: Conference Series* 234 (2010). doi: [10.1088/1742-6596/234/1/012017](https://doi.org/10.1088/1742-6596/234/1/012017).
- [38] A. N. Zotova und D. Y. Vodolazov. "Photon detection by current-carrying superconducting film: A time-dependent Ginzburg-Landau approach". In: *Physical Review B* 85 (2 Jan. 2012), S. 024509. doi: [10.1103/PhysRevB.85.024509](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.024509).
- [39] J. Yang, A. Kerman, E. Dauler, V. Anant, K. Rosfjord und K. Berggren. "Modeling the Electrical and Thermal Response of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors". In: *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 17.2 (Juni 2007), S. 581–585. doi: [10.1109/TASC.2007.898660](https://doi.org/10.1109/TASC.2007.898660).
- [40] A. J. Kerman, E. A. Dauler, W. E. Keicher, J. K. W. Yang, K. K. Berggren, G. Gol'tsman und B. Voronov. "Kinetic-inductance-limited reset time of superconducting nanowire photon counters". In: *Applied Physics Letters* 88.11 (2006), S. 111116. doi: [10.1063/1.2183810](https://doi.org/10.1063/1.2183810).
- [41] A. J. Annunziata, D. F. Santavicca, L. Frunzio, G. Catelani, M. J. Rooks, A. Frydman und D. E. Prober. "Tunable superconducting nanoinductors". In: *Nanotechnology* 21.445202 (2010), S. 6. doi: [10.1088/0957-4484/21/44/445202](https://doi.org/10.1088/0957-4484/21/44/445202).

- [42] R. W. Heeres und V. Zwiller. “Superconducting detector dynamics studied by quantum pump-probe spectroscopy”. In: *Applied Physics Letters* 101.11, 112603 (2012), S. 112603. doi: 10.1063/1.4750139.
- [43] S. Ferrari, V. Kovalyuk, W. Hartmann, A. Vetter, O. Kahl, C. Lee, A. Korneev, C. Rockstuhl, G. Gol’tsman und W. Pernice. “Hot-spot relaxation time current dependence in niobium nitride waveguide-integrated superconducting nanowire single-photon detectors”. In: *Optics Express* 25.8 (Apr. 2017), S. 8739–8750. doi: 10.1364/OE.25.008739.
- [44] R. Cheng, X. Guo, X. Ma, L. Fan, K. Y. Fong, M. Poot und H. X. Tang. “Self-aligned multi-channel superconducting nanowire single-photon detectors”. In: *Optics Express* 24.24 (Nov. 2016), S. 27070–27076. doi: 10.1364/OE.24.027070.
- [45] A. J. Miller, A. E. Lita, B. Calkins, I. Vayshenker, S. M. Gruber und S. W. Nam. “Compact cryogenic self-aligning fiber-to-detector coupling with losses below one percent”. In: *Optics Express* 19.10 (Mai 2011), S. 9102–9110. doi: 10.1364/OE.19.009102.
- [46] L. Redaelli, G. Bulgarini, S. Dobrovolskiy, S. N. Dorenbos, V. Zwiller, E. Monroy und J. M. Gérard. “Design of broadband high-efficiency superconducting-nanowire single photon detectors”. In: *Superconductor Science and Technology* 29.6 (2016), S. 065016. doi: 10.1088/0953-2048/29/6/065016.
- [47] M. Ziegler, L. Fritzsche, J. T. Day, S. Linzen, S. Anders, J. T. Toussaint und H.-G. Meyer. “Superconducting niobium nitride thin films deposited by metal organic plasma-enhanced atomic layer deposition”. In: *Superconductor Science and Technology* 26.025008 (2013), S. 5. doi: 10.1088/0953-2048/26/2/025008.
- [48] S. Linzen, M. Ziegler, O. Astafiev, M. Schmelz, U. Huebner, M. Diegel, E. Il’ichev und H.-G. Meyer. “Structural and electrical properties of ultrathin niobium nitride films grown by atomic layer deposition”. In: *Superconductor Science and Technology* 30.3 (2017), S. 035010. doi: 10.1088/1361-6668/aa572a.
- [49] J. Toussaint, M. Ziegler, H.-G. Meyer, K. Ilin und M. Siegel. “Properties of SNSPDs fabricated by atomic layer deposition”. In: *Presentation ID 4EPo2D-13 [137]*. Hrsg. von A. S. C. (ASC). 2016.
- [50] M. Sidorova, A. Semenov, H.-W. Hübers, A. Kuzmin, S. Doerner, K. Ilin, M. Siegel, I. Charaev und D. Vodolazov. “Timing jitter in photon detection by straight superconducting nanowires: Effect of magnetic field and photon flux”. In: *Phys. Rev. B* 98 (13 Okt. 2018), S. 134504. doi: 10.1103/PhysRevB.98.134504. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.98.134504>.
- [51] W. Becker, A. Bergmann, M. Hink, K. König, K. Benndorf und C. Biskup. “Fluorescence Lifetime Imaging by Time-Correlated Single-Photon Counting”. In: *Microscopy Research and Technique* 63 (2004), S. 58–66.
- [52] W. Becker. *The bh TCSPC Handbook*. English. 6th. Becker & Hick GmbH, 2014, S. 147–149. 768 S. URL: <http://www.becker-hickl.com>.



- [53] V. Shcheslavskiy, P. Morozov, A. Divochiy, Y. Vakhtomin, K. Smirnov und W. Becker. "Ultrafast time measurements by time-correlated single photon counting coupled with superconducting single photon detector". In: *Review of Scientific Instruments* 87.5 (2016), S. 053117. doi: 10.1063/1.4948920.
- [54] F. Puente León und U. Kiencke. *Messtechnik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, 2010. 420 S. ISBN: 978-3-486-59748-6.
- [55] L. You, X. Yang, Y. He, W. Zhang, D. Liu, W. Zhang, L. Zhang, L. Zhang, X. Liu, S. Chen, Z. Wang und X. Xie. "Jitter analysis of a superconducting nanowire single photon detector". In: *Applied Physics Letters Advances* 3.7, 072135 (2013). doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4817581>.
- [56] W. Becker. *The bh TCSPC Handbook*. English. 2nd. Becker und Hick GmbH, 2010. 554 S.
- [57] S. Kumar und M. J. Deen. "Fiber optic communications : fundamentals and applications". In: (2014). doi: 10.1002/9781118684207.
- [58] R. Engelbrecht. *Fibre Optic Communication : Key Devices*. Hrsg. von H. Venghaus und N. Grote. Cham, 2017. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-319-42367-8>.
- [59] *Compact CCD Spectrometers from Thorlabs*. 2017. URL: [https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup\\_ID=3482](https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_ID=3482) (besucht am 05.09.2017).
- [60] *Modular Spectrometers from ocean Optics*. 2017. URL: <https://oceanoptics.com/product-category/modular-spectrometers/> (besucht am 05.09.2017).
- [61] *Modular and Fiber Coupled Raman Spectrometers from Horiba*. 2017. URL: <http://www.horiba.com/de/scientific/products/raman-spectroscopy/raman-spectrometers/modular-and-fiber-coupled-raman/> (besucht am 05.09.2017).
- [62] I. H. MALITSON. "Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica". In: *Journal of the Optical Society of America* 55.10 (Okt. 1965), S. 1205–1208. doi: 10.1364/JOSA.55.001205.
- [63] R. Noé. *Essentials of Modern Optical Fiber Communication*. 2nd ed. 2016. SpringerLink : Bücher. Berlin, Heidelberg: Springer, 2016. ISBN: 978-3-662-49623-7. doi: 10.1007/978-3-662-49623-7.
- [64] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2*. Experimentalphysik / Wolfgang Demtröder. Springer Berlin Heidelberg, 2008. ISBN: 978-3-540-68210-3. URL: <https://books.google.de/books?id=AtDxWU39CTMC>.
- [65] N. R. Teja, M. A. Babu, T. Prasad und T. Ravi. "Different types of dispersion in an Optical Fiber". In: *International Journal of Scientific and Research Publications* 2.12 (Dez. 2012). ISSN 2250-3153, S. 5.
- [66] *Dispersion in Fasern*. 2017. URL: <http://www.lwltechnik.de/files/dispersionsmessungen-probe.pdf> (besucht am 06.09.2017).



- [67] O. Butov, K. Golant, A. Tomashuk, M. van Stralen und A. Breuls. "Refractive index dispersion of doped silica for fiber optics". In: *Optics Communications* 213 (2002), S. 301–308.
- [68] *Fundamentals: Fibers; Schäfer & Kirchhoff, Germany*. 2017. URL: [https://www.sukhamburg.com/download/smfbk\\_e.pdf](https://www.sukhamburg.com/download/smfbk_e.pdf) (besucht am 06. 09. 2017).
- [69] J. A. Buck. *Fundamentals of Optical Fibers*. Englisch. 2. 2004. ISBN: 0-471-22191-0.
- [70] P. Atkins und J. de Paula. *ATKINS' PHYSICAL CHEMISTRY*. 8th. Oxford University Press, 2006. 1064 S. ISBN: 9780198700722.
- [71] *Fluorescence Lifetime Imaging Picture from Picoquant*. 2017. URL: <https://www.picoquant.com/applications/category/life-science/time-resolved-fluorescence#papers> (besucht am 07. 09. 2017).
- [72] J. Brandmüller und H. Moser. *Einführung in die Ramanspektroskopie*. Bd. 70. Wissenschaftliche Forschungsberichte - Naturwissenschaftliche Reihe. reprint of the 1st edition 1962. Darmstadt: Dr. Dietrich Steinkopf Verlag, 1962, S. 515. DOI: 10.1007/978-3-642-86520-6.
- [73] P. M. Fechner. *Raman-Spektroskopie und Atmosphärische Rasterelektronenspektroskopie -Charakterisierung pharmazeutischer Hilfsstoffe*. 2005. URL: <http://digital.bibliothek.uni-halle.de/hs/urn/urn:nbn:de:gbv:3-000009811>.
- [74] M. Krause, P. Rösch, B. Radt und J. Popp. "Localizing and Identifying Living Bacteria in an Abiotic Environment by a Combination of Raman and Fluorescence Microscopy". In: *Analytical Chemistry* 80.22 (2008), S. 8568–8575. DOI: 10.1021/ac8014559.
- [75] J. Zhao, H. Lui, D. I. McLean und H. Zeng. *Real-Time Raman Spectroscopy for Noninvasive in vivo Skin Analysis and Diagnosis, New Developments in Biomedical Engineering*. Hrsg. von D. Campolo. InTech, 2010. DOI: 10.5772/7603.
- [76] C. L. Evans und X. S. Xie. "Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy: Chemical Imaging for Biology and Medicine". In: *Annual Review of Analytical Chemistry* 1.1 (2008). PMID: 20636101, S. 883–909. DOI: 10.1146/annurev.anchem.1.031207.112754.
- [77] W. Min, C. W. Freudiger, S. Lu und X. S. Xie. "Coherent Nonlinear Optical Imaging: Beyond Fluorescence Microscopy". In: *Annual Review of Physical Chemistry* 62.1 (2011). PMID: 21453061, S. 507–530. DOI: 10.1146/annurev.physchem.012809.103512.
- [78] B. Schrader, Hrsg. *Infrared and Raman spectroscopy-methods and applications*. 1. s, 1996. ISBN: 3-527-26446-9. DOI: 10.1002/pi.1996.210410117.
- [79] J. De Gelder, K. De Gussem, P. Vandenabeele und L. Moens. "Reference database of Raman spectra of biological molecules". In: *Journal of Raman Spectroscopy* 38.9 (2007), S. 1133–1147. ISSN: 1097-4555. DOI: 10.1002/jrs.1734.

- [80] C. Krafft, B. Dietzek, J. Popp und M. Schmitt. "Raman and coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy for biomedical applications". In: *Journal of Biomedical Optics* 17 (2012). DOI: 10.1117/1.JBO.17.4.040801.
- [81] M. Schmitt und J. Popp. "Raman spectroscopy at the beginning of the twenty-first century". In: *Journal of Raman Spectroscopy* 37.1-3 (2006), S. 20–28. DOI: 10.1002/jrs.1486.
- [82] E. Smith und G. Dent. *Modern Raman Spectroscopy: A Practical Approach*. John Wiley & Sons, Ltd., 2005. 224 S. ISBN: 978-0-471-49794-3.
- [83] O. Ceas. *Fundamentals of Raman spectroscopy*. 2012. URL: <https://www.utwente.nl/en/tmw/mcbp/documentation/fundamentals/raman.pdf> (besucht am 15.06.2018).
- [84] C. Krafft, B. Dietzek und J. Popp. "Raman and CARS microspectroscopy of cells and tissues". In: *Analytist* 6.134 (2009), S. 1046–1057. DOI: 10.1039/B822354H.
- [85] C. Krafft, M. Schmitt, I. W. Schie, D. Cialla-May, C. Matthäus, T. Bocklitz und J. Popp. "Markerfreie molekulare Bildgebung biologischer Zellen und Gewebe durch lineare und nichtlineare Raman-spektroskopische Ansätze". In: *Angewandte Chemie* 129.16 (), S. 4458–4500. DOI: 10.1002/ange.201607604.
- [86] C. Krafft, I. W. Schie, T. Meyer, M. Schmitt und J. Popp. "Developments in spontaneous and coherent Raman scattering microscopic imaging for biomedical applications". In: *Chemical Society Reviews* 45 (7 2016), S. 1819–1849. DOI: 10.1039/C5CS00564G.
- [87] *Unterlagen zur Instrumentellen Analytik der FH München*. 2017. URL: %5Curl%7Bhttp://dodo.fb06.fh-muenchen.de/maier/analytik/Blaetter/N05\_Monochromatoren\_d\_BAneu.pdf%7D (besucht am 14.09.2017).
- [88] *Abbildung eines Zeilensensors von Hamamatsu aus dem Datenblatt*. 2017. URL: <https://www.hamamatsu.com/us/en/S11151-2048.html> (besucht am 14.09.2017).
- [89] *Schematische Abbildung eines konfokalen Raman-Spektrometers der Universität Bayreuth*. 2017. URL: [http://www.agkador.phy.uni-bayreuth.de/de/projects\\_web/Konfokale\\_Mikroskopietechniken/index.html](http://www.agkador.phy.uni-bayreuth.de/de/projects_web/Konfokale_Mikroskopietechniken/index.html) (besucht am 14.09.2017).
- [90] *Werkstoffdaten Glasfaserverstärkter Kunststoff*. 2016. URL: <http://www.swiss-composite.ch/pdf/i-Werkstoffdaten.pdf> (besucht am 21.06.2016).
- [91] Landolt-Börnstein. "Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik". In: *IV. Band Technik, 2. Teil*. 6. 1964, 673 f.
- [92] M. Hofherr, K. Rall D. and. Il'in, A. Semenov, H.-W. Hübers und M. Siegel. "Dark Count Suppression in Superconducting Nanowire Single Photon Detectors". In: *Journal of Low Temperature Physics* 167 (2012), S. 822–826. DOI: 10.1007/s10909-012-0495-9.

- [93] Reichelt, *Multimeter Modell PEAKTECH 3203*. 2016. URL: [https://www.reichelt.de/?ARTICLE=163761&PROVID=2788&wt\\_mc=amc141526782519998&gclid=CLrd5efp\\_80CFQoz0wodVmgGKw](https://www.reichelt.de/?ARTICLE=163761&PROVID=2788&wt_mc=amc141526782519998&gclid=CLrd5efp_80CFQoz0wodVmgGKw) (besucht am 19. 07. 2016).
- [94] A. J. Kerman, J. K. W. Yang, R. J. Molnar, E. A. Dauler und K. K. Berggren. "Electrothermal feedback in superconducting nanowire single-photon detectors". In: *Physical Review B* 79 (10 März 2009), S. 100509. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.100509.
- [95] F. Marsili, F. Najafi, E. D., F. Bellei, X. Hu, M. Csete, R. J. Molnar und K. K. Berggren. "Single-Photon Detectors Based on Ultranarrow Superconducting Nanowires". In: *Nano Letters* 11 (2011), S. 2048–2053. DOI: 10.1021/nl2005143.
- [96] A. D. Semenov, R. S. Nebosis, Y. Gousev, M. Heusinger und K. Renk. "Analysis of the nonequilibrium photoresponse of superconducting films to pulsed radiation by use of a two temperature model". In: *Physical Review B* 52.1 (1995), S. 581–590. DOI: 10.1103/PhysRevB.52.581.
- [97] F. B. Hagedorn und P. M. Hall. "Right Angle Bends in Thin Strip Conductors". In: *Journal of Applied Physics* 34.1 (1963), S. 128–133. DOI: 10.1063/1.1729052. eprint: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1729052>.
- [98] J. R. Clem und K. K. Berggren. "Geometry-dependent critical currents in superconducting nanocircuits". In: *Physical Review B* 84 (17 Nov. 2011), S. 174510. DOI: 10.1103/PhysRevB.84.174510.
- [99] M. Fujiwara, A. Tanaka, S. Takahashi, K. Yoshino, Y. Nambu, A. Tajima, S. Miki, T. Yamashita, Z. Wang, A. Tomita und M. Sasaki. "Afterpulse-like phenomenon of superconducting single photon detector in high speed quantum key distribution system". In: *Physical Review* 19.20 (Sep. 2011), S. 19562–19571. DOI: 10.1364/OE.19.019562.
- [100] V. Burenkov, H. Xu, B. Qi, R. H. Hadfield und H.-K. Lo. "Investigations of afterpulsing and detection efficiency recovery in superconducting nanowire single-photon detectors". In: *Journal of Applied Physics* 113.21 (2013), S. 213102. DOI: 10.1063/1.4807833. eprint: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4807833>. URL: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4807833>.
- [101] F. Marsili, F. Najafi, E. Dauler, R. J. Molnar und K. K. Berggren. "Afterpulsing and instability in superconducting nanowire avalanche photodetectors". In: *Applied Physics Letters* 100.11, 112601 (2012), S. 112601. DOI: 10.1063/1.3691944.
- [102] M. Ejrnaes, A. Casaburi, R. Cristiano, O. Quaranta, S. Marchetti, N. Martucciello, S. Pagano, A. Gaggero, F. Mattioli, R. Leoni, P. Cavalier und J.-C. Villégier. "Timing jitter of cascade switch superconducting nanowire single photon detectors". In: *Applied Physics Letters* 95.132503 (2009). DOI: 10.1063/1.3237172.
- [103] *Hamamatsu Photonics, Photomultiplier Tubes - Basics and Applications, Edition 3a*. 2007. URL: [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT\\_handbook\\_v3aE.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/PMT_handbook_v3aE.pdf) (besucht am 30. 06. 2017).

- [104] *Messfehler, Fehlerberechnung und Fehlerabschätzung*. 2012. URL: <https://www.tu-braunschweig.de/Medien-DB/pci/fehlerrechnung.pdf> (besucht am 02.07.2017).
- [105] M. D. Henry, S. Wolfley, T. Young, T. Monson, C. J. Pearce, R. Lewis, B. Clark, L. Brunke und N. Missert. "Degradation of Superconducting Nb/NbN Films by Atmospheric Oxidation". In: *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 27.4 (Juni 2017), S. 1–5. ISSN: 1051-8223. DOI: 10.1109/TASC.2017.2669583.
- [106] M. Hofherr, D. Rall, K. Il'in, M. Siegel, A. Semenov, H.-W. Hübers und N. A. Gippius. "Intrinsic detection efficiency of superconducting nanowire single-photon detectors with different thicknesses". In: *Journal of Applied Physics* 108.1, 014507 (2010), S. 014507. DOI: 10.1063/1.3437043.
- [107] D. Liu, S. Miki, T. Yamashita, L. You, Z. Wang und H. Terai. "Multimode fiber-coupled superconducting nanowire single-photon detector with 70% system efficiency at visible wavelength". In: *Optics Express* 22.18 (Sep. 2014), S. 21167–21174. DOI: 10.1364/OE.22.021167.
- [108] V. Anant, A. J. Kerman, E. A. Dauler, J. K. W. Yang, K. M. Rosfjord und K. K. Berggren. "Optical properties of superconducting nanowire single-photon detectors". In: *Optics Express* 16 (2008), S. 10750–10761. DOI: <http://dx.doi.org/10.1364/OE.16.010750>.
- [109] *Raman Scattering and Fluorescence*. URL: <http://www.horiba.com/fileadmin/uploads/Scientific/Documents/Raman/Fluorescence01.pdf> (besucht am 11.08.2016).
- [110] W. B. Whitten und H. H. Ross. "Fiber Optic Waveguides for Time-of-Flight Optical Spectrometry". In: *Analytical Chemistry* 51.3 (März 1979), S. 417–419.
- [111] P. Matousek und M. Morris. *Emerging Raman Applications and Techniques in Biomedical and Pharmaceutical Fields*. Springer Science & Business Media, 2010, S. 221–222. 478 S. URL: [http://www.springer.com/de/book/9783642026485?wt\\_mc=GoogleBooks.GoogleBooks.3.EN&token=gbgen#otherversion=9783642026492](http://www.springer.com/de/book/9783642026485?wt_mc=GoogleBooks.GoogleBooks.3.EN&token=gbgen#otherversion=9783642026492).
- [112] D. Wei, S. Chen und Q. Liu. "Review of Fluorescence Suppression Techniques in Raman Spectroscopy". In: *Applied Spectroscopy Reviews* 50.5 (2015), S. 387–406. DOI: 10.1080/05704928.2014.999936.
- [113] *Plotting Fluorescence Spectra*. 2015. URL: <http://www.lifetechnologies.com/de/de/home/life-science/cell-analysis/labeling-chemistry/fluorescence-spectraviewer.html> (besucht am 20.03.2015).
- [114] I.-M. Chou. "Calibration of Raman shifts of cyclohexane for quantitative analyses of methane density in natural and synthetic fluid inclusions". In: *Journal of Raman Spectroscopy* (2015). ISSN: 1097-4555. DOI: 10.1002/jrs.4643.

- [115] D. Magde, R. Wong und P. G. Seybold. "Fluorescence Quantum Yields and Their Relation to Lifetimes of Rhodamine 6G and Fluorescein in Nine Solvents: Improved Absolute Standards for Quantum Yields". In: *Photochemistry and Photobiology* 75.4 (2002), S. 327–334. ISSN: 1751-1097. DOI: 10.1562/0031-8655(2002)0750327FQYATR2.0.CO2.
- [116] K. A. Selanger, J. Falnes und T. Sikkeland. "Fluorescence lifetime studies of Rhodamine 6G in methanol". In: *The Journal of Physical Chemistry* 81.20 (Okt. 1977), S. 1960–1963. DOI: 10.1021/j100535a016.
- [117] W. Demtröder. *Experimentalphysik- Elektrizität und Optik*. 5. Aufl. Bd. 2. 2009. ISBN: 978-3-540-68210-3.
- [118] K. S. Abedin, M. Hyodo und N. Onodera. "Measurement of the chromatic dispersion of an optical fiber by use of a Sagnac interferometer employing asymmetric modulation". In: *Optics Letters* 25.5 (März 2000), S. 299–301. DOI: 10.1364/OL.25.000299.
- [119] J. Fernando. *Two methods measure chromatic dispersion*. 2002. URL: <https://www.edn.com/design/test-and-measurement/4386390/Two-methods-measure-chromatic-dispersion> (besucht am 03.07.2018).
- [120] M. Wilder. *Understanding and measuring chromatic dispersion*. 2000. URL: <https://www.fiberopticonline.com/doc/understanding-and-measuring-chromatic-dispers-0002> (besucht am 03.07.2018).
- [121] *Materialdaten von Eppendorff-Gefäßen*. 2015. URL: <http://www.eppendorf.com/int/index.php?pb=0d3dc1eb976d2945&action=support&contentid=1&catalognode=9775&productpage=7> (besucht am 05.05.2015).
- [122] Z. Meng, S. Cheng, G. I. Petrov, J. A. Jo und V. V. Yakovlev. "Raman spectroscopy using time-correlated photon-counting detection". In: *Proceedings of SPIE* 8572 (2013), S. 6. DOI: 10.1117/12.2002923.
- [123] *Hamamatsu Datenblatt R3809U-50*. 2015. URL: [https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/R3809U-50\\_TPMH1067E.pdf](https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/R3809U-50_TPMH1067E.pdf) (besucht am 07.05.2015).
- [124] R. L. McCreery. *Handbook of Vibrational Spectroscopy. Photometric Standards for Raman Spectroscopy*. Photometric Standards for Raman Spectroscopy. Hrsg. von J. M. Chalmers und P. R. Griffiths. Bd. 1. Wiley, 2002, S. 920–932. 932 S. ISBN: 978-0-471-98847-2.
- [125] *Horiba: Übersicht zur Auflösung von Spektrometern*. URL: <http://www.horiba.com/de/scientific/products/optical-spectroscopy/spectrometers-monochromators/> (besucht am 17.07.2018).
- [126] G. Petrov, V. Yakovlev und V. Shcheslavskiy. "Raman spectroscopy without spectrometer". In: *CLEO:2011 - Laser Applications to Photonic Applications*. Optical Society of America, 2011, PDPB6. DOI: 10.1364/CLEO\_SI.2011.PDPB6. URL: [http://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLEO\\_SI-2011-PDPB6](http://www.osapublishing.org/abstract.cfm?URI=CLEO_SI-2011-PDPB6).

- [127] V. Yakovlev, G. I. Petrov und V. Shcheslavskiy. “Shot-noise-limited, Real-time Raman Spectroscopy Using Time-correlated Photon-counting Detection”. In: *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012*. Optical Society of America, 2012. doi: 10.1364/CLEO\_SI.2012.CTh3G.7.
- [128] R. Lusche, A. Semenov, Y. Korneeva, A. Trifonov, A. Korneev, G. Gol’tsman und H.-W. Hübers. “Effect of magnetic field on the photon detection in thin superconducting meander structures”. In: *Physical Review B* 89 (10 März 2014), S. 104513. doi: 10.1103/PhysRevB.89.104513.
- [129] I. Charaev, A. Semenov, S. Doerner, G. Gomard, K. Ilin und M. Siegel. “Current dependence of the hot-spot response spectrum of superconducting single-photon detectors with different layouts”. In: *Superconductor Science and Technology* 30.2 (2017), S. 025016. URL: <http://stacks.iop.org/0953-2048/30/i=2/a=025016>.
- [130] F. Najafi, J. Mower, N. C. H. and Francesco Bellei, A. Dane, C. Lee, X. Hu, P. Kharel, F. Marsili, S. Assefa, K. K. Berggren und D. Englund. “On-chip detection of non-classical light by scalable integration of single-photon detectors”. In: *Nature Communications* 6.5873 (2015). doi: 10.1038/ncomms6873.
- [131] K. Il’in, M. Hofherr, D. Rall, M. Siegel, A. Semenov, A. Engel, K. Inderbitzin, A. Aeschbacher und A. Schilling. “Ultra-thin TaN Films for Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors”. English. In: *Journal of Low Temperature Physics* 167.5-6 (2012), S. 809–814. ISSN: 0022-2291. doi: 10.1007/s10909-011-0424-3.

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Modellhafte Darstellung der Detektorstrukturierung . . . . .	5
2.2	Elektronenstrahlmikroskopaufnahme der aktiven Detektionsfläche eines SNSPD	6
2.3	Darstellung der Entwicklung eines <i>Hot-Spots</i> . . . . .	7
2.4	Darstellung eines SNSPD-Pulses nach Absorption eines Photons . . . . .	8
2.5	Blick auf Detektor und Optik bei offenem Kryostaten. . . . .	11
2.6	Beispiele zur Detektionseffizienzsteigerung aus der Literatur . . . . .	12
2.7	Möglichkeiten zur Steigerung der IDE aus der Literatur . . . . .	13
2.8	Funktionsprinzip einer TCSPC-Messung . . . . .	15
2.9	Mechanismus des <i>Inter-Pulse Pile-Ups</i> . . . . .	18
2.10	Einfluss des klassischen <i>Pile-up</i> -Effekts auf das Messergebnis . . . . .	18
2.11	Schema zur Entstehung des Amplitudenjitters . . . . .	20
2.12	Dämpfung in Glasfasern . . . . .	20
2.13	Verschiedene Fasertypen in der Übersicht . . . . .	21
2.14	Bestimmung des maximalen Akzeptanzwinkels . . . . .	22
2.15	Schema der Fluoreszenzübergänge, Absorptions- und Emissionsspektrums und des zeitlichen Verlaufs . . . . .	26
2.16	Schematische Darstellung von Rayleigh- und Raman-Streuung . . . . .	29
2.17	Bestandteile eines Spektrometers . . . . .	31
3.1	Aufbau des Messsystems zur SNSPD Charakterisierung . . . . .	33
3.2	Optischer Aufbau zur SNSPD Charakterisierung . . . . .	34
3.3	Seitenansicht des Kryostatinneren auf die 4 K -Kaltplatte . . . . .	36
3.4	Vakuumdurchführung der Glasfaser . . . . .	36
3.5	Aufbau des Detektortisches . . . . .	37
3.6	Optischer Aufbau zur Orientierung im eingekühlten Zustand . . . . .	38
3.7	Hilfsstruktur zur Orientierung auf SNSPD-Chip . . . . .	39
3.8	Photostrom und Spotdurchmesser bei Überstreichen einer Goldkante . . . . .	39
3.9	Messaufbau zur Charakterisierung des Jitterbeitrages der TCSPC-Elektronik	41
3.10	Normiertes Histogramm der TCSPC-Elektronik . . . . .	42
3.11	CR und DCR aufgetragen über $I_b$ von Chip 3NbN281-5 singlewire . . . . .	44
3.12	Messaufbau zur Charakterisierung des Jitterbeitrages der Verstärker . . . . .	46
3.13	Charakteristika der eingesetzten Verstärker . . . . .	47



3.14	Messung der erreichbaren Zeitauflösung beim Einsatz von bis zu drei in Reihe geschalteten Verstärkern . . . . .	47
3.15	Einzelphotonenpuls eines SNSPD . . . . .	49
3.16	Abhängigkeit der Zeitauflösung vom Triggerlevel . . . . .	49
3.17	Zero-Crossing-Einstellungen bei unterschiedlichen Delays . . . . .	50
3.18	3NbN281-5: Zusammenhang zwischen erreichbarer Zeitauflösung und ZC-Level . . . . .	51
3.19	Dreidimensionale Darstellung der Abhängigkeit der erreichbaren Zeitauflösung . . . . .	52
3.20	Darstellung der Zeitauflösung bei Variation von CFD- und ZC-Level . . . . .	53
3.21	Vorgaben für das SNSPD Mäander-Design mit variiertem $L_{kin}$ . . . . .	54
3.22	Vorgaben für das SNSPD Streifen-Design . . . . .	55
3.23	Chip Nr. 3NbN281:REM Aufnahmen des aktiven SNSPD Bereichs der unterschiedlichen Layouts . . . . .	56
3.24	Chip Nr. 3NbN647:REM Aufnahmen des aktiven SNSPD Bereichs der unterschiedlichen Layouts . . . . .	57
3.25	Eckdaten zu Chip Nr. 3NbN281 . . . . .	57
3.26	Eckdaten zu Chip Nr. 3NbN647 . . . . .	58
3.27	Einflusses des CFD-levels auf die erreichbaren Zeitauflösung bei konstanter Detektionsfläche . . . . .	59
3.28	Vergleich des Einflusses des ZC-Levels auf die erreichbaren Zeitauflösung bei konstanter Detektionsfläche . . . . .	60
3.29	Zeitaufösungen und Histogramme von Einzelstreifen . . . . .	61
3.30	Zeitaufösungen und Histogramme von Doppelstreifen . . . . .	61
3.31	Zeitaufösungen und Histogramme von Dreifachstreifen . . . . .	61
3.32	Einfluss des CFD-Levels auf die Zeitauflösung bei Streifengeometrie . . . . .	65
3.33	Einfluss des ZC-Levels auf die Zeitauflösung bei bei Streifengeometrie . . . . .	66
3.34	Zeitauflösung auf unterschiedlichen Positionen entlang eines geraden Streifens . . . . .	67
3.35	Positionsabhängige Zeitauflösung von Chip 3NbN647 (Streifengeometrie) . . . . .	69
3.36	Zeitaufgelöste Histogramme der „s“- , „2p“- und „3p“-Varianten . . . . .	69
3.37	Veränderungen der Raumtemperaturwiderstände durch Alterung . . . . .	71
3.38	Veränderung des kritischen Stroms sowie der Zeitauflösung durch Alterung. . . . .	72
3.39	Einfluss von CFD- und ZC-Level bei Streifengeometrie . . . . .	73
3.40	Positionsabhängige Zeitauflösung von Chip 3NbN647-1 . . . . .	73
3.41	Histogramm der besten gemessenen IRF von Chip 3NbN647-1 . . . . .	74
4.1	Qualitativer zeitlicher Verlauf von Fluoreszenz . . . . .	78
4.2	Aufbau der gesamten Messanordnung für die Spektroskopiemessungen . . . . .	79
4.3	Optischer Aufbau in Detail . . . . .	79
4.4	Absorptions- und Emissionsspektrum von Rhodamin 6G . . . . .	81
4.5	TCSPC: Leermessung mit Probenküvette im Strahlengang . . . . .	83



---

4.6	Raman-Spektren bei unterschiedlichen Konzentrationen des Fluoreszenzfarbstoffes Rhodamin 6g . . . . .	84
4.7	TCSPC-Messung der Probe FR1 mit Cyclohexan und Rhodamin 6g . . . . .	84
4.8	Lebensdauerbestimmung bei unterschiedlichen Rhodamin 6g Konzentrationen in Cyclohexan . . . . .	85
4.9	Zeitlich aufgelöste Messung von Raman-Streuer mit und ohne Fluoreszenzanteil . . . . .	86
4.10	Spektrum von Methanol und zeitaufgelöste Messung mit optischen Filtern . .	86
4.11	Wellenlängenabhängige Laufzeit von Photonen bei unterschiedlicher Faserlänge	88
4.12	Spektrum von Cyclohexan . . . . .	89
4.13	Berechnete Kalibrierungskurve für die zeitaufgelösten Spektren . . . . .	90
4.14	Cyclohexan, Methanol (Flüssigkeiten) und Polypropylen eines Eppendorff-Gefäßes als Spektrum und TCSPC-Messung . . . . .	92
4.15	TCSPC-Messungen von Cyclohexan mit unterschiedlicher Faserlänge . . . .	94
4.16	Berechnung der Auflösungsverbesserung durch Einsatz einer Singlemode-Faser	95
4.17	Spektrum und zeitaufgelöste Messung von DMSO (Dimethylsulfoxid) . . . .	98



# Tabellenverzeichnis

3.1	Einfluss der Bandbreite auf die erreichbare Zeitauflösung . . . . .	48
3.2	Eigenschaften der Einzel-, Doppel- und Dreifach-SNSPD . . . . .	56
3.3	$R_{25\text{ K}}$ und $I_c$ von Chip 3NbN281 und Chip 3NbN647 im Vergleich . . . . .	58
3.4	Verwendete Messparameter für Positionsvariation von Chip 3NbN647, Streifendesign . . . . .	68
4.1	Übersicht der Spektroskopieproben . . . . .	82
4.2	Daten des SNSPD für die zeitaufgelösten Messungen . . . . .	83
4.3	Koeffizienten der Gaussfunktionen bei Zeitauflösungen von 32,7 ps und 47 ps	95



# Karlsruher Schriftenreihe zur Supraleitung

Karlsruher Institut für Technologie (KIT) | ISSN 1869-1765

---

Herausgeber: Prof. Dr.-Ing. M. Noe, Prof. Dr. rer. nat. M. Siegel

- Band 001      **Christian Schacherer**  
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur  
Entwicklung supraleitender resistiver Strombegrenzer. 2009  
ISBN 978-3-86644-412-6
- Band 002      **Alexander Winkler**  
Transient behaviour of ITER poloidal field coils. 2011  
ISBN 978-3-86644-595-6
- Band 003      **André Berger**  
Entwicklung supraleitender, strombegrenzender  
Transformatoren. 2011  
ISBN 978-3-86644-637-3
- Band 004      **Christoph Kaiser**  
High quality Nb/Al-AlO<sub>x</sub>/Nb Josephson junctions. Technological  
development and macroscopic quantum experiments. 2011  
ISBN 978-3-86644-651-9
- Band 005      **Gerd Hammer**  
Untersuchung der Eigenschaften von planaren Mikrowellen-  
resonatoren für Kinetic-Inductance Detektoren bei 4,2 K. 2011  
ISBN 978-3-86644-715-8
- Band 006      **Olaf Mäder**  
Simulationen und Experimente zum Stabilitätsverhalten  
von HTSL-Bandleitern. 2012  
ISBN 978-3-86644-868-1

- Band 007      **Christian Barth**  
High Temperature Superconductor Cable Concepts  
for Fusion Magnets. 2013  
ISBN 978-3-7315-0065-0
- Band 008      **Axel Stockhausen**  
Optimization of Hot-Electron Bolometers for THz Radiation. 2013  
ISBN 978-3-7315-0066-7
- Band 009      **Petra Thoma**  
Ultra-fast  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  direct detectors for the THz  
frequency range. 2013  
ISBN 978-3-7315-0070-4
- Band 010      **Dagmar Henrich**  
Influence of Material and Geometry on the Performance  
of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors. 2013  
ISBN 978-3-7315-0092-6
- Band 011      **Alexander Scheuring**  
Ultrabreitbandige Strahlungseinkopplung in THz-Detektoren. 2013  
ISBN 978-3-7315-0102-2
- Band 012      **Markus Rösch**  
Development of lumped element kinetic inductance detectors  
for mm-wave astronomy at the IRAM 30 m telescope. 2013  
ISBN 978-3-7315-0110-7
- Band 013      **Johannes Maximilian Meckbach**  
Superconducting Multilayer Technology for Josephson  
Devices. 2013  
ISBN 978-3-7315-0122-0
- Band 014      **Enrico Rizzo**  
Simulations for the optimization of High Temperature  
Superconductor current leads for nuclear fusion applications. 2014  
ISBN 978-3-7315-0132-9

- Band 015      **Philipp Krüger**  
Optimisation of hysteretic losses in high-temperature superconducting wires. 2014  
ISBN 978-3-7315-0185-5
- Band 016      **Matthias Hofherr**  
Real-time imaging systems for superconducting nanowire single-photon detector arrays. 2014  
ISBN 978-3-7315-0229-6
- Band 017      **Oliver Näckel**  
Development of an Air Coil Superconducting Fault Current Limiter. 2016  
ISBN 978-3-7315-0526-6
- Band 018      **Christoph M. Bayer**  
Characterization of High Temperature Superconductor Cables for Magnet Toroidal Field Coils of the DEMO Fusion Power Plant. 2017  
ISBN 978-3-7315-0605-8
- Band 019      **Shengnan Zou**  
Magnetization of High Temperature Superconducting Trapped-Field Magnets. 2017  
ISBN 978-3-7315-0715-4
- Band 020      **Ilya Charaev**  
Improving the Spectral Bandwidth of Superconducting Nanowire Single-Photon Detectors (SNSPDs). 2018  
ISBN 978-3-7315-0745-1
- Band 021      **Juliane Raasch**  
Electrical-field sensitive  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  detectors for real-time monitoring of picosecond THz pulses. 2019  
ISBN 978-3-7315-0786-4
- Band 022      **Yingzhen Liu**  
Design of a superconducting DC wind generator. 2019  
ISBN 978-3-7315-0796-3

- Band 023      **Sebastian Hellmann**  
Research and Technology Development on Superconducting  
Current Limiting Transformers. 2019  
ISBN 978-3-7315-0804-5
- Band 024      **Simon J. Otten**  
Characterisation of REBCO Roebel cables. 2019  
ISBN 978-3-7315-0904-2
- Band 025      **Julia Brandel**  
Supraleitende Einzelphotonenzähler: Optimierung der Zeitauflösung  
und Anwendungsbeispiele aus der Spektroskopie. 2019  
ISBN 978-3-7315-0917-2





## Karlsruher Schriftenreihe zur Supraleitung

Prof. Dr.-Ing. M. Noe, Prof. Dr. rer. nat. M. Siegel (Hrsg.)

Supraleitende Einzelphotonenzähler (SNSPD) sind aufgrund ihrer Einzelphotonenempfindlichkeit und ihrer weiteren positiven Eigenschaften, wie beispielsweise extrem hohe zeitliche Auflösung und kurze Totzeiten, interessant für den Einsatz in der Spektroskopie. Gerade im Bereich der Raman-Spektroskopie stehen häufig nur sehr wenige Photonen zur Verfügung. Kommen konkurrierende Prozesse wie Fluoreszenz hinzu, wird die Detektion der Raman-Streuung umso herausfordernder. Durch eine hohe zeitliche Auflösung solcher gemischter Signale ist es beispielsweise aufgrund des unterschiedlichen zeitlichen Verhaltens beider Prozesse möglich, instantane Streuung weitestgehend von Fluoreszenz zu separieren. Um beiden Themen gerecht zu werden, wurden in dieser Arbeit beide Bereiche in Form von zwei Schwerpunkten adressiert. Im ersten Teil der Arbeit wurden die Parameter untersucht, die die Zeitauflösung der SNSPD beeinflussen. Hierzu wurden spezielle Detektorgeometrien verwendet, um geometrische Einflüsse auf die Ergebnisse zu minimieren. Der Fokus des zweiten Teils der Arbeit liegt auf dem Einsatz der SNSPD in der Spektroskopie, wobei zwei mögliche Anwendungsfelder vorgestellt werden. Beide Themen werden, ausgehend von Probenauswahl über Methodik, Messtechnik und Vorstellung der Ergebnisse, ausführlich diskutiert und Optimierungsmöglichkeiten abgeleitet.

ISSN 1869-1765  
ISBN 978-3-7315-0917-2

