

RUPRECHT-KARLS-UNIVERSITÄT HEIDELBERG



KIRCHHOFF-INSTITUT FÜR PHYSIK

INAUGURAL - DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde
der Naturwissenschaftlich - Mathematischen
Gesamtfakultät
der
Ruprecht - Karls - Universität
Heidelberg

vorgelegt von
Dipl.-Phys. Jan Schönefeld
aus Münster (Westf.)

Tag der mündlichen Prüfung 31. Mai 2000

**Entwicklung eines
mikrostrukturierten magnetischen
Tieftemperatur-Kalorimeters
zum hochauflösenden Nachweis
von einzelnen Röntgenquanten**

**Gutachter: Prof. Dr. Karlheinz Meier
Priv. Doz. Dr. Christian Enss**

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein magnetisches Kalorimeter für den hochauflösenden Nachweis von einzelnen Röntgenquanten entwickelt. Bei der Absorption eines Röntgenquants wird die Temperaturerhöhung eines metallischen, paramagnetischen Sensors über die Änderung seiner Magnetisierung mit Hilfe eines empfindlichen SQUID-Magnetometers nachgewiesen. Die Wechselwirkung zwischen den Leitungselektronen und den magnetischen Momenten ermöglicht schnelle interne Relaxationszeiten ($< 1 \mu\text{s}$) und damit verbunden schnelle zeitliche Verläufe der Signale. Die Leitungselektronen besitzen jedoch eine zusätzliche Wärmekapazität und sie vermitteln die RKKY-Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten, weshalb ihre Anwesenheit eine Reduktion der Höhe des Kalorimetersignals bewirkt. Zur Untersuchung des Einflusses der Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten auf die thermodynamischen Eigenschaften des Sensormaterials wurden zwei Berechnungsmethoden entwickelt. Die berechnete Magnetisierung und die Signalhöhe des Kalorimeters zeigten gute Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Werten. Magnetische Kalorimeter besitzen eine vergleichsweise große intrinsische Wärmekapazität, was eine hohe Flexibilität bezüglich der Wahl des Absorbers ermöglicht. Dadurch bedingt konnte eine große Quanteneffizienz von nahezu 100 % (bei 6 keV) und eine exzellente Linearität erreicht werden. Mit einem Sensor, der eine Wärmekapazität von $1,3 \cdot 10^{-12} \text{ J/K}$ besaß, konnte eine Energieauflösung von 13 eV (FWHM) bei einer Röntgenenergie von 6 keV erreicht werden.

Development of a Magnetic Low Temperature Micro Calorimeter for the Detection of Single X-Ray Quanta.

This thesis describes the development of a high resolution magnetic calorimeter for the detection of single x-rays. The raise in temperature of a metallic paramagnetic sensor due to the absorption of an x-ray is sensed by measuring its change in magnetization using a sensitive SQUID magnetometer. The electron-spin interaction enables fast internal relaxation times ($< 1 \mu\text{s}$) of the sensor and accordingly fast signal response times. The conduction electrons however contribute to the total heat capacity and serve as a medium for the indirect RKKY interaction between the localized magnetic moments, which reduces the signal size of the calorimeter. The influence of this interaction was studied using two different algorithms. The calculated magnetization and the signal size are in good agreement with the experimental data. Magnetic calorimeters bear a large intrinsic heat capacity, which provides considerable flexibility in choosing an additional absorber. Hence a quantum efficiency of almost 100 % (at 6 keV) and an excellent linearity could be obtained. With a sensor having a heat capacity of $1,3 \cdot 10^{-12} \text{ J/K}$, an energy resolution of 13 eV (FWHM) for 6 keV x-rays was achieved.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Konzepte und Anwendungen von Tiefemperatur-Teilchendetektoren	3
2.1	Halbleiter-Thermistoren	3
2.2	Supraleitende Phasenübergangs-Sensoren	4
2.3	Supraleitende Tunneldioden	5
3	Magnetische Kalorimeter	7
3.1	Prinzip und Funktionsweise	7
3.2	Sensormaterial AuEr	8
3.3	Isolierte magnetische Momente	11
3.3.1	Kristallfeld	11
3.3.2	Thermodynamische Beschreibung	13
3.4	Wechselwirkende magnetische Momente	16
3.4.1	Wechselwirkungsmechanismen	16
3.4.2	Magnetische Ordnung	18
3.4.3	Molekularfeld-Näherung	21
3.4.4	Exakte Diagonalisierung des Hamilton-Operators	23
3.5	Berechnung der thermodynamischen Eigenschaften des Sensors unter Berücksichtigung der Wechselwirkung	26
3.5.1	Magnetisierung	27
3.5.2	Wärmekapazität	28
3.5.3	Kalorimetersignal	29
3.5.4	Einfluss der Spinkonzentration	31
4	Experimentelle Technik	33
4.1	Tiefe Temperaturen	33

4.2	SQUID-Technik	34
4.2.1	SQUID-Grundlagen	34
4.2.2	Flussrückkopplung und Modulation	35
4.2.3	Ketchen-SQUID	38
4.3	Aufbau des magnetischen Kalorimeters	41
4.3.1	Kupferträger	41
4.3.2	Sensor	42
4.3.3	Absorber	44
4.3.4	Kollimator	46
4.3.5	Test-Röntgenquelle	47
4.3.6	Äußeres Magnetfeld	48
4.4	Regelung der Temperatur	49
4.5	Signalverarbeitung im Kalorimeterbetrieb	51
4.5.1	Analoge Signalaufbereitung	51
4.5.2	Digitale Signalaufzeichnung	52
4.5.3	Signalauswertung	53
4.6	Aufbau zur experimentellen Bestimmung von Magnetisierung und Pulshöhe	58
5	Eigenschaften von AuEr in Bezug auf die Anwendung als Sensor	61
5.1	Magnetisierung	61
5.2	Pulsform	62
5.2.1	Signalanstieg	63
5.2.2	Signalabfall	64
5.3	Unbekanntes Wärmereservoir	68
5.4	Magnetfeldabhängigkeit der Signalhöhe	69
6	Betrieb des Kalorimeters ohne Quelle	71
6.1	Sensortemperatur	71
6.2	Rauschen des Ruhesignals	72
7	Betrieb des Kalorimeters mit ^{55}Fe-Quelle	81
7.1	Optimale Betriebsparameter	81
7.1.1	Tatsächliche Pulsform	81
7.1.2	Signal-zu-Rauschen-Verhältnis	83
7.2	Röntgenspektrum von Mangan	85

7.2.1	Betrieb ohne Absorber	85
7.2.2	Betrieb mit zusätzlichem Absorber	87
7.3	Analyse der Linienverbreiterung	90
7.3.1	Berechnung der Sample-Standardabweichung	91
7.3.2	Ursachen für die Linienverbreiterung	94
7.3.3	Temperaturschwankungen	94
7.3.4	Magnetfeldschwankungen	95
7.3.5	Variation der Röntgenenergie	95
7.4	Linearität des Kalorimetersignals	96
8	Zusammenfassung	99
	Literaturverzeichnis	101

1. Einleitung

Die Entdeckung verschiedener Arten von Strahlung hatte zum Ende des 19ten Jahrhunderts für großes Aufsehen gesorgt. Im Jahr 1895 entdeckte W.C. Röntgen bei Experimenten mit Kathodenstrahlen durchdringende Strahlen, denen er die Bezeichnung 'X-Strahlung' gab.[Rön1896] Im Jahr 1901 erhielt er für die Entdeckung und die Charakterisierung der später nach ihm benannten Röntgenstrahlung den Nobelpreis für Physik.

Die Beobachtung der Emission von radioaktiver Strahlung und die Untersuchung der Wechselwirkung mit Materie geht auf die Experimente von A.H. Becquerel und Marie und Pierre Curie zurück (ab 1896). Auch diese Entdeckung war von so weitreichendem Einfluss auf die bis dahin geltenden Naturgesetze, dass ihnen zusammen im Jahr 1903 der Nobelpreis für Physik verliehen wurde.

Mit ihrer Entdeckung wurden diese Strahlungsarten ein fester Bestandteil der Physik. Sie erwiesen sich als ideales Werkzeug, um Aufschluss über den Aufbau der Materie zu erhalten: Von Atomkernen über Festkörper bis hin zum Aufbau des Universums. Im Zuge der Anwendung und Beobachtung von Strahlung wurden die benötigten Nachweisgeräte stetig hinsichtlich ihrer Quanteneffizienz, erreichbarer Zählrate, Linearität und insbesondere Energieauflösung fortentwickelt.

Der Nachweis von Strahlung gelang zunächst (wenn auch unbeabsichtigt) durch die Schwärzung von Photoplatten. Doch schon im Jahr 1903 demonstrierten P. Curie und A. Laborde [Cur03] den kalorimetrischen Nachweis der von einem Radiumpräparat entwickelten Wärme. Zu den heute gebräuchlichen Nachweisgeräten zählen beispielsweise Proportionalzähler, Szintillationszähler, Halbleiterdetektoren und in jüngster Zeit auch Tieftemperaturkalorimeter.

Die Entwicklung von Tieftemperaturkalorimetern geht auf die Idee von F. Simon [Sim35] zurück. Simon schlug vor, die Wärmekapazität eines Kalorimeters durch den Betrieb bei tiefen Temperaturen zu verringern, um so bei gleichem Wärmeeintrag eine größere Temperaturerhöhung zu erzielen. Dieser Idee schenkte man lange Zeit nur wenig Aufmerksamkeit. Doch die Entwicklung von leistungsfähigen Geräten für die Erzeugung tiefer Temperaturen ebnete den Weg für die Entwicklung von Tieftemperatur-Detektoren, beispielsweise zur Anwendung in der Astrophysik. Im Jahr 1987 wurde die erste Konferenz über Tieftemperaturdetektoren abgehal-

ten (LTD-1)¹, wo verschiedene Konzepte und die ersten Erfolge hinsichtlich der Entwicklung von Tieftemperatur-Detektoren diskutiert wurden. Den Schwerpunkt bildeten zu diesem Zeitpunkt Anwendungen in der Astrophysik, wie beispielsweise der Nachweis von Neutrinos und Dunkler Materie.

Inzwischen wurden eine Vielzahl von Konzepten für den Nachweis von Teilchen bei tiefen Temperaturen entwickelt. Dazu zählen beispielsweise Halbleiter-Thermistoren, supraleitende Tunnelkontakte, supraleitende Phasenübergangsthermometer und das magnetische Kalorimeter, um nur einige zu nennen. Drei wichtige Konzepte für Tieftemperatur-Detektoren und Beispiele für deren Anwendungen werden in Kapitel 2 beschrieben.

Das Konzept magnetischer Kalorimeter geht auf die Grundidee von M. Bühler und E. Umlauf [Büh88] zurück. Sie wiesen die Temperaturerhöhung eines dielektrischen paramagnetischen Sensors über dessen Magnetisierungsänderung bei der Absorption einzelner α -Teilchen nach. Obwohl bereits bei diesen ersten Experimenten eine gute Energieauflösung demonstriert werden konnte, erwiesen sich die vergleichsweise langen intrinsischen Thermalisierungszeiten dieses Sensortyps für viele Anwendungen jedoch als unakzeptabel. Wie S. Bandler *et al.* [Ban93] zeigten, kann das Problem der langen Thermalisierungszeiten gelöst werden, wenn statt eines dielektrischen Paramagneten ein metallisches System eingesetzt wird.

In Kapitel 3 wird die prinzipielle Funktionsweise eines magnetischen Kalorimeters und die thermodynamischen Eigenschaften des metallischen paramagnetischen Sensormaterials beschrieben. Die magnetischen Momente werden zunächst als Wechselwirkungsfrei betrachtet. Im darauffolgenden Schritt wird die Wechselwirkung in eine genauere Berechnung der thermodynamischen Größen einbezogen, wozu zwei Methoden entwickelt wurden.

In Kapitel 4 wird der verwendete experimentelle Aufbau des magnetischen Kalorimeters beschrieben. Dieser umfasst den mechanischen Aufbau der Kalorimeters, die elektronischen Komponenten und die Signalaufzeichnung. Darüberhinaus werden die Methode und die Eigenschaften der Signalauswertung erläutert.

Die Diskussion der experimentell bestimmten Eigenschaften des Sensors, wie z.B. die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit von Magnetisierung, Pulsform und Pulshöhe, ist der Inhalt von Kapitel 5. Das darauffolgende Kapitel 6 beschreibt die Charakterisierung des Kalorimeters beispielsweise hinsichtlich des Rauschens.

In Kapitel 7 werden die erreichte Energieauflösung im niederenergetischen Röntgenbereich sowie andere Eigenschaften von zwei Prototypdetektoren diskutiert und eine Analyse der Linienbreite präsentiert. Die Energieauflösung wurde anhand des Röntgenspektrums von Mangan zu 13 eV (FWHM) bei 6 keV bestimmt. Bei dieser Energie betrug die Quantenausbeute nahezu 100 %.

Nach den bisherigen Erfahrungen sollte es mit einem optimierten Aufbau möglich sein, eine Energieauflösung von $\Delta E/E < 5 \cdot 10^{-4}$ zu erreichen.

¹LTD = Low Temperature Detectors.

2. Konzepte und Anwendungen von Tieftemperatur-Teilchendetektoren

Der Betrieb von Detektoren bei tiefen Temperaturen erweist sich aus vielerlei Hinsicht als vorteilhaft. Zum einen führt die Absenkung der Temperatur in der Regel zu einer Reduktion der Wärmekapazität des Detektors und damit bei gleichem Wärmeeintrag zu einer größeren Temperaturerhöhung. Zum anderen werden im Bereich tiefer Temperaturen Elementaranregungen nutzbar, die nur sehr kleine Energien besitzen, was folgender Vergleich zeigt: Hochauflösende, bei 77 K betriebene Halbleiter-Detektoren nutzen als Elementaranregung die Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren, deren Anregungsenergie wenige eV beträgt. Im Gegensatz dazu können Tieftemperatur-Detektoren beispielsweise die Bindungsenergie von Cooper-Paaren (\approx meV) oder das Umklappen von Spins im Magnetfeld ($< 1\mu\text{eV}$) als Elementaranregung nutzen. Für Tieftemperatur-Detektoren sind dadurch Effekte, die allein auf der Statistik der Elementaranregungen beruhen, selbst beim Nachweis von Teilchen im Energiebereich unter 1 keV vernachlässigbar.

Die Anzahl der Konzepte für die Realisierung von Tieftemperatur-Detektoren ist bei weitem zu groß, als dass alle an dieser Stelle beschrieben werden könnten. Aus diesem Grund sollen drei wichtige Konzepte herausgegriffen und ihre Funktionsweisen und Eigenschaften anhand von Anwendungen beschrieben werden. Eine ausführliche Beschreibung ist in Übersichtsartikeln wie z.B. [Sad96] oder [Twe96] zu finden.

2.1 Halbleiter-Thermistoren

Bei der Entwicklung von Tieftemperatur-Detektoren wurden Halbleiter-Thermistoren bereits frühzeitig als vielversprechende Kandidaten für Temperatursensoren angesehen.[Hal85] Ihre Funktionsweise ist in Abb. 2.1 schematisch dargestellt. Der Thermistor ist ein Halbleiterwiderstand, dessen Widerstand-Temperatur-Kennlinie durch gezieltes Dotieren so verändert worden ist, dass sie eine große Steilheit bei der Arbeitstemperatur besitzt. Eine homogene Dotierung wird meist durch Ionenimplantierung [McC93], oder Neutronentransmutation (NTD¹) [Hal85] erreicht.

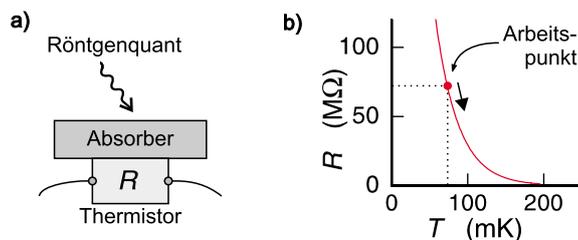


Abbildung 2.1:
a) Schematische Darstellung eines Thermistors zusammen mit einem Absorber.
b) Schematische Widerstands-Temperatur-Kennlinie eines Thermistors.

¹NTD = Neutron Transmutation Doped <engl.> (Dotierung durch Neutronentransmutation).

Die durch die Absorption eines Röntgenquants hervorgerufene Temperaturerhöhung in Absorber und Thermistor (Teilbild a)) führt zu einer Reduzierung des Widerstandes des Thermistors (Teilbild b)). Diese Widerstandsänderung kann auf empfindliche Weise gemessen werden, und sie stellt ein Maß für die absorbierte Energie dar.

Die derzeit höchste absolute Energieauflösung eines Tieftemperatur-Detektors unter Anwendung eines Halbleiter-Thermistors als Temperatursensor wurde von A. Alessandrello *et al.* [Ale99] berichtet. Der Detektor bestand aus einem NTD-Germanium-Thermistor mit einem Zinn-Absorber. Bei einer Betriebstemperatur von 70 mK ist der Zinn-Absorber supraleitend und besitzt daher eine sehr geringe Wärmekapazität. Die erreichte instrumentelle Energieauflösung betrug 5,2 eV (FWHM bei 5,9 keV) bei einer Quantenausbeute von nahezu 100%. Die effektive Ereignisrate war jedoch mit 5 pro Minute vergleichsweise klein.

Die von E. Fiorini geleitete Gruppe entwickelt Thermistoren, u.a. für die Anwendung in kernphysikalischen Experimenten. Als Beispiel seien hier die Bestimmung der (Anti)-Elektronenneutrino-Masse aus dem ^{187}Re - β -Zerfall oder die Suche nach dem neutrinosen Doppel- β -Zerfall am Beispiel von ^{130}Te genannt. Mit diesen beiden und einer Vielzahl anderer Experimente werden physikalische Gesetzmäßigkeiten erforscht, die möglicherweise im Widerspruch zu den Vorhersagen des Standardmodells stehen. Ein Übersichtsartikel über die Anwendung von Tieftemperatur-Detektoren in der Kernphysik ist beispielsweise die Veröffentlichung von E. Fiorini [Fio91].

2.2 Supraleitende Phasenübergangs-Sensoren

Supraleitende Phasenübergangs-Sensoren (TES²) nutzen die steile Widerstands-Temperatur-Kennlinie eines Supraleiters in der Nähe der Sprungtemperatur aus, um hochempfindlich Temperaturänderungen bestimmen zu können. Die prinzipielle Funktionsweise ist in Abb. 2.2 dargestellt. Der TES-Sensor wird in Form einer

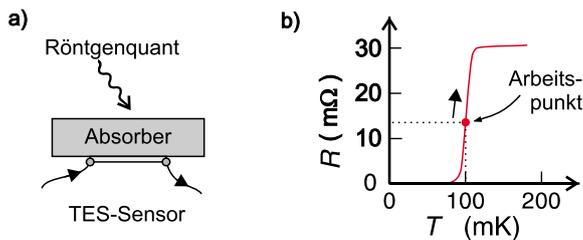


Abbildung 2.2:

- a) Schematische Darstellung eines TES-Sensors auf einem Absorber.
- b) Schematische Widerstands-Temperatur-Kennlinie eines TES-Sensors.

dünnen, supraleitenden Schicht auf ein Substrat aufgedampft. Der in vielen Fällen benötigte Absorber kann mit Hilfe derselben Technik direkt auf dem TES-Sensor aufgebracht werden. D. Wollman *et al.* demonstrierten die auf diesem Verfahren basierende Herstellung eines Aluminium-Silber-TES-Sensors mit einer Sprungtemperatur von ca. 100 mK, in Verbindung mit einem Wismut-Absorber. Mit diesem Aufbau erzielten Wollman *et al.* bei einer Röntgenenergie von 1,5 keV die derzeit höchste absolute Energieauflösung von 2,0 eV (FWHM) und einer Quantenausbeute von ca. 95% [Wol00].

Diese Tieftemperatur-Detektoren werden von D. Wollman *et al.* u.a. für den Ein-

²TES = Transition-Edge-Sensor.

satz als Spektrometer zur ortsaufgelösten Röntgen-Fluoreszenzanalyse von Oberflächen entwickelt. Der Aufbau eines solchen Gerätes ist in Abb. 2.3 a) schematisch dargestellt. Die zu untersuchende Probe wird von einem Elektronen-Strahl punkt-

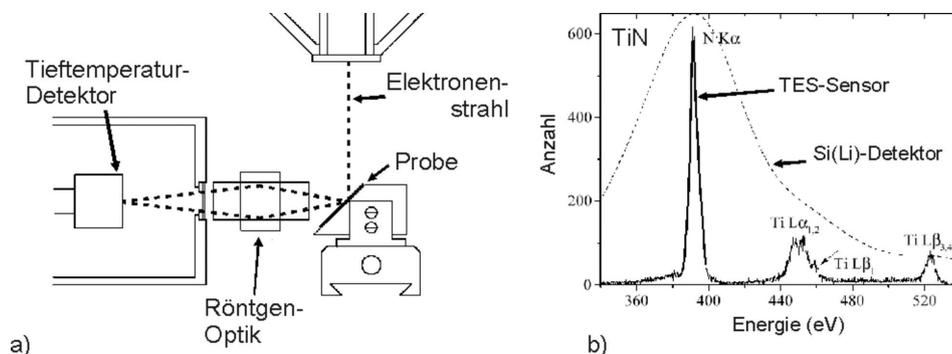


Abbildung 2.3: a) Schematische Darstellung eines Aufbaus für die Röntgen-Fluoreszenzanalyse, bestehend aus einem Tieftemperatur-Detektor und einem Elektronenmikroskop. (nach [Wol00])
 b) Vergleich zwischen den Röntgenemissionsspektren einer Probe (TiN), die mit einem kommerziellen Si(Li)-Halbleiterdetektor bzw. einem TES-Sensor aufgenommen wurden. (nach [Wol00])

genau abgetastet. Die 'beleuchteten' Atome, die sich innerhalb einer oberflächennahen Schicht befinden emittieren ihre charakteristische Röntgenstrahlung, die durch eine Röntgenoptik auf einen Tieftemperatur-Detektor gebündelt wird. Das mit einer solchen Apparatur bestimmte Röntgenspektrum einer TiN-Probe ist in Abb. 2.3 b) dargestellt. Dieses wurde in einem Fall mit einem TES-Sensor gemessen, mit Hilfe dessen die $N-K_{\alpha}$ -Linie deutlich von den $Ti-L_{\alpha}$ - und $Ti-L_{\beta}$ -Linien getrennt werden konnten. In dem Spektrum, das mit einem kommerziellen hochauflösenden Si(Li)-Halbleiterdetektor aufgenommen wurde, ist eine solche Trennung nicht möglich. Eine Bestimmung der Elementzusammensetzung und insbesondere der Nachweis von möglichen Verunreinigungen wäre in diesem Fall erheblich erschwert.

2.3 Supraleitende Tunnelnioden

Das dritte, hier vorgestellte Konzept für die Realisierung eines Tieftemperatur-Teilchendetektors sind supraleitende Tunnelnioden (STJ³). Die Funktionsweise solcher Tunnelnioden basiert auf der empfindlichen Messung des Quasiteilchen-Tunnelstromes zwischen zwei supraleitenden dünnen Schichten, die durch eine wenige Å dünne Isolationsschicht voneinander getrennt sind.

Zwischen den beiden voneinander isolierten Supraleitern wird eine Vorspannung angelegt. Ein Röntgenquant, das in jener supraleitenden Schicht absorbiert wird, welche das höhere elektrische Potential besitzt, kann dort eine Vielzahl von Cooper-Paaren aufbrechen. Für jede einzelne dieser Elementaranregungen wird mindestens die doppelte Bandlückenenergie (typischerweise einige meV) benötigt. Durch die angelegte Spannung ist es den erzeugten Elektronen energetisch erlaubt, durch die

³STJ = Superconducting Tunnel Junction <engl.> (supraleitende Tunnelbarriere).

Isolationsschicht in den zweiten Supraleiter zu tunneln bevor sie wieder zu Cooper-Paaren rekombinieren. Der *kurzzeitige* elektrische Strom der tunnelnden Quasiteilchen kann empfindlich gemessen werden und dient als Maß für die absorbierte Energie.⁴

Das große Potential von STJ-Detektoren liegt im Nachweis von kleinen Röntgenenergien ($\lesssim 1$ keV), da die in vielen Fällen benötigte hohe Quanteneffizienz bei Energien oberhalb von 1 keV nur schwer zu realisieren ist. Besonders vorteilhaft sind solche Detektoren aufgrund ihrer kurzen Signaldauer und den damit erreichbaren hohen Zählraten von bis zu 10^4 pro Sekunde [Lab97]. Mit STJ-Detektoren können beispielsweise Röntgenquanten der Energie $E_\gamma \approx 260$ eV mit einem Auflösungsvermögen von ca. 3 eV nachgewiesen werden.[DHa98]

Neben der Röntgen-Fluoreszenzanalyse oder Anwendungen in der Astrophysik werden solche Detektoren beispielsweise als Sensoren für Massenspektrometer für Biomoleküle eingesetzt. Bei dieser Anwendung soll der Vorteil der Verwendung von Tieftemperatur-Detektoren anhand der Entwicklung von J. Ullom *et al.* [Ull00] beschrieben werden.

In Abb. 2.4 ist das Massenspektrum des Mikroorganismus "Bacillus Cereus" dargestellt, welches mit einem Flugzeitspektrometer unter Anwendung von zwei verschiedenen Detektortypen aufgenommen wurde: Zum einen mit einem konventionellen Micro-Channel-Plate-Detektor (MCP) und zum anderen mit einer supraleitenden Nb-AlO_x-Nb-Tunneldiode (STJ). Ein Vergleich der beiden Massenspektren zeigt,

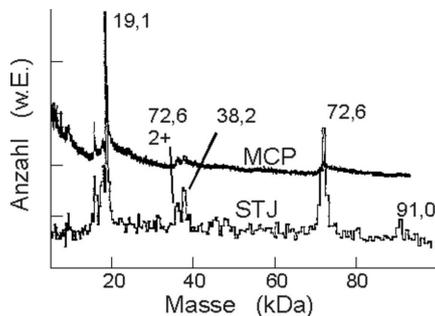


Abbildung 2.4: Massenspektrum des Mikroorganismus (Bacillus Cereus). Das Spektrum wurde sowohl mit einem STJ- als auch mit einem MCP-Detektor aufgenommen. (Nach [Ull00])

dass der Untergrund der STJ- gegenüber der MCP-Messung deutlich reduziert ist. Dadurch bedingt kann beispielsweise das Maximum der zweifach positiv geladenen Ionen der Masse⁵ 72,6 kDa mit dem STJ-Detektor vom Maximum der einfach geladenen Ionen der Masse 38,2 kDa getrennt werden. Zusätzlich ist in der STJ-Messung ein kleines Maximum bei der Masse 91 kDa sichtbar, welches bei der MCP-Messung vom Untergrund überdeckt ist.

Auch im Rahmen dieser speziellen Anwendung ist erkennbar, dass der Informationsgewinn bei der Anwendung von Tieftemperatur-Detektoren deutlich präziser und vollständiger ist, als dieses bei der Anwendung von konventionellen Detektoren der Fall ist.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass man Tieftemperatur-Detektoren flexibel und vielseitig in einer Vielzahl von physikalischen Experimenten und Anwendungen einsetzen kann.

⁴Eine ausführliche Beschreibung von supraleitenden Tunneldioden ist z.B. in [Kra97] zu finden.

⁵Die Masse 1 Da (Dalton) entspricht der Masse eines Wasserstoffatoms.

3. Magnetische Kalorimeter

Das in dieser Arbeit diskutierte magnetische Kalorimeter nutzt die temperaturabhängige Magnetisierung des metallischen, paramagnetischen Sensormaterials aus, um Wärmeinträge und die damit verbundenen Temperaturänderungen des Sensors nach einem Absorptionsvorgang nachzuweisen. Dieses soll im folgenden Abschnitt genauer beschrieben werden.

3.1 Prinzip und Funktionsweise

Die wesentlichen Komponenten eines magnetischen Kalorimeters sind in Abb. 3.1 in schematischer Form dargestellt. Kernstück ist der paramagnetische Sensor, der über eine schwache thermische Kopplung mit einem Wärmebad verbunden ist. Der Sensor

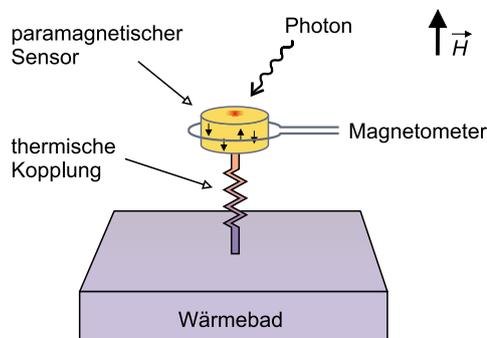


Abbildung 3.1:
Schematische Abbildung der wesentlichen Komponenten eines magnetischen Kalorimeters.

besitzt in einem äußeren Magnetfeld¹ H eine temperaturabhängige Magnetisierung M . Wird nun ein Röntgenquant der Energie E_γ im Sensor absorbiert, so erzeugt diese Energie eine Temperaturerhöhung

$$\delta T = \frac{E_\gamma}{C_{\text{tot}}}, \quad (3.1)$$

die somit eine Änderung der Magnetisierung δM bewirkt, wobei C_{tot} die Gesamtwärmekapazität des Sensors bezeichnet. Über das Sensorvolumen V ist die Änderung

¹Der Begriff 'Magnetfeld' wird in dieser Arbeit als Synonym für Begriff 'magnetisches Feld' aber auch für die 'magnetische Flussdichte' \mathbf{B} verwendet werden, wenn eine Verwechslung mit dem makroskopischen magnetischen Feld \mathbf{H} nicht möglich ist.

der Magnetisierung mit der Änderung des magnetischen Momentes des Sensors δm verknüpft,

$$\delta m = V \delta M, \quad (3.2)$$

die in der umgebenden Leiterschleife einen magnetischen Fluss $\delta \Phi$ induziert. Diese Flussänderung kann mit Hilfe eines SQUID-Magnetometers² mit großer Genauigkeit nachgewiesen werden.

Zusammengefasst gilt daher die sogenannte *Transferfunktion* des magnetischen Kalorimeters

$$\delta \Phi \propto \frac{\partial M}{\partial T} \frac{1}{C_{\text{tot}}} E_{\gamma}. \quad (3.3)$$

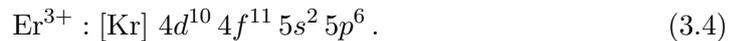
In dieser Form wird das Kalorimetersignal $\delta \Phi$, auf das noch an vielen Stellen Bezug genommen wird, proportional zu $\frac{\partial M}{\partial T}$ und invers proportional zu C_{tot} . Diese Faktoren sind allein durch die thermodynamischen Eigenschaften des Sensormaterials bestimmt.³ Bei der Optimierung des Kalorimetersignals möchte man daher eine möglichst große Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung und gleichzeitig kleine Wärmekapazität haben.

Im folgenden Abschnitt werden einige wesentliche Eigenschaften des verwendeten Sensormaterials diskutiert und die zur Beschreibung notwendigen thermodynamischen Größen hergeleitet.

3.2 Sensormaterial AuEr

Als Sensormaterialien werden polykristalline Metalle verwendet, in die geringe Konzentrationen von paramagnetischen Ionen eingebracht wurden. Im hier diskutierten magnetischen Kalorimeter werden Goldproben verwendet, die mit Erbium dotiert wurden. Die Entscheidung für die Wahl dieses Materials wurde u.a. dadurch begünstigt, dass AuEr bereits in den 1960er Jahren mit Hilfe von ESR-, Magnetisierungs- und Hyperfein-Resonanzmessungen untersucht wurde und daher viele Details der Eigenschaften als bekannt vorausgesetzt werden können.

Erbium ist ein Seltenerdmetall und wird als dreifach positiv geladenes Ion substitutionell auf Goldgitterplätzen in das fcc-Wirtsgitter eingebaut und besitzt die Elektronenkonfiguration



Die Besonderheit der Elektronenkonfiguration der Seltenerdmetalle wie Erbium ist die Tatsache, dass sich die nicht vollständig gefüllten $4f$ -Orbitale weit im Inneren der $5s$ - und $5p$ -Orbitale befinden. Für Erbium ergibt sich ein Radius der maximalen Aufenthaltswahrscheinlichkeit für $4f$ -Elektronen von $r_{4f} \approx 0,25 \text{ \AA}$. Dagegen liegt

²SQUID = Superconducting Quantum Interference Device.

³Im Allgemeinen müssen auch die Eigenschaften eines optimalen Absorbers berücksichtigt werden. Zunächst wird jedoch auf die Einbeziehung dessen verzichtet.

der Radius der $5s$ - und $5p$ -Orbitale bei etwa $0,7 \text{ \AA}$. [Fra76] Dadurch ergibt sich eine effiziente Abschirmung der $4f$ -Elektronen durch die Elektronen in den äußeren Orbitalen. Eine schematische Abbildung des Gold-fcc-Gitters mit einem durch ein Er^{3+} -Ion substituierten Gitterplatz ist in Abb. 3.2, zusammen mit den Radien der diskutierten Orbitale dargestellt. Im Vergleich dazu besitzen die für den Magnetis-

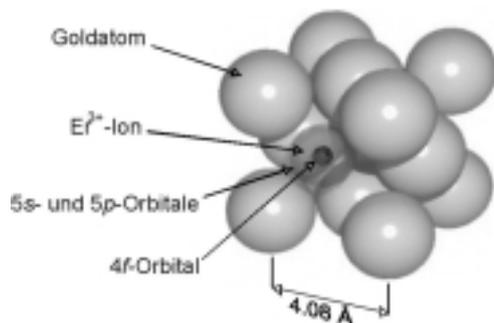


Abbildung 3.2:

Schematische Abbildung eines Ausschnitts des Gold-fcc-Gitters mit einem Er^{3+} -Ion auf einem Gitterplatz.

mus der Übergangsmetalle verantwortlichen $3d$ - oder $4d$ -Elektronen keine derartige Abschirmung.

Bei Erbium als magnetisches Ion im Sensor muß allerdings beachtet werden, dass die natürliche Isotopenzusammensetzung 23% ^{167}Er mit dem Kernspin $I = 7/2$ enthält. Aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung [Sjo75] ergibt sich bei tiefen Temperaturen ($T \lesssim 50 \text{ mK}$) durch dieses Isotop eine unerwünschte Verringerung der magnetischen Suszeptibilität. Darüberhinaus wird durch diesen Beitrag auch die Wärmekapazität des Sensors erhöht. Der Beitrag der Hyperfeinwechselwirkung zur Gesamtwärmekapazität hat ein Maximum bei ca. 30 mK. [Fle98][Hor99] Beide Aspekte des ^{167}Er -Anteils beeinträchtigen die Signalhöhe des Kalorimeters und sollten daher möglichst vermieden werden. Für die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Proben wurde daher eine Dotierung mit angereichertem ^{167}Er vorgenommen.⁴ Die Isotopenzusammensetzung ist wie folgt: Ein Anteil von 95,3% liegt in Form von ^{166}Er , 2,8% in Form von ^{167}Er vor, und der verbleibende Anteil liegt in Form der Isotope ^{164}Er , ^{168}Er und ^{170}Er vor.

Für die Wahl von Gold⁵ als Wirtsmaterial sprechen verschiedene Gründe. Ausschlag gebend war, wie bereits angedeutet wurde, die Kenntnis vieler physikalischer Eigenschaften des AuEr -Systems, was in erheblichem Umfang zum Verständnis der Eigenschaften des Sensormaterials beiträgt. Gold besitzt die Massenzahl $Z = 197$. Der daraus resultierende hohe Massenabsorptionskoeffizient für niederenergetische Röntgenquanten erlaubt es in vielen Fällen, den Sensor selbst als Absorber für die Röntgenquanten einzusetzen. Vom technischen Gesichtspunkt aus betrachtet zeichnet sich Gold durch die einfache Handhabung und die Möglichkeit der Anwendung von Aufdampftechniken aus.

Ein weiterer wichtiger Vorteil wird bei der genauen Betrachtung des Absorptionvorgangs des Röntgenquants deutlich. Dessen Energie wird zunächst auf ein *einzelnes* Photoelektron übertragen. In dielektrischen Materialien thermalisiert die Energie des

⁴Lieferant: Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TE 37831, USA.

⁵Lieferant: W.C. Heraeus GmbH & Co. KG, D-63405 Hanau.

Photoelektrons im Gitter. Aufgrund der Spin-Gitter-Wechselwirkung relaxiert diese Energie in das System der magnetischen Momente, wo sie als Änderung der Magnetisierung sichtbar wird. Die Zeitkonstante für die Relaxation liegt bei Temperaturen $T < 1\text{ K}$ häufig im Bereich von Sekunden und ist daher für kalorimetrische Anwendungen i.Allg. zu lang. In einem metallischen Sensor thermalisiert die Energie des Photoelektrons dagegen im System der Leitungselektronen, deren Kopplung an das System der magnetischen Momente um Größenordnungen stärker ist. Die Zeitkonstante für die Elektron-Spin-Kopplung wird durch die Korring-Beziehung [Kor50] beschrieben und beträgt für Erbium in Gold im Bereich von 10 mK $\tau \lesssim 1\ \mu\text{s}$. [Sjo75] Um diesen erheblichen Unterschied zu verdeutlichen, ist in Abb. 3.3 der zeitliche Verlauf des Kalorimetersignals für ein dielektrisches und ein metallisches Sensormaterial dargestellt.

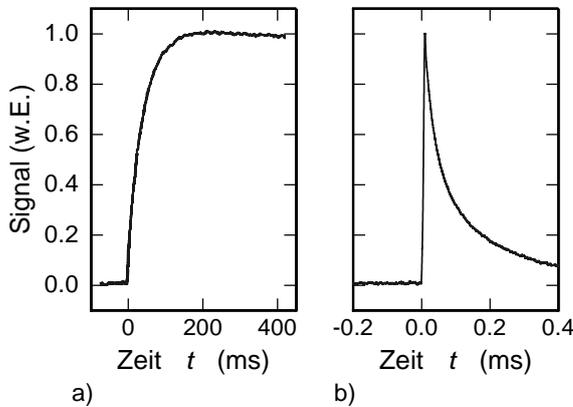


Abbildung 3.3:

Vergleich zwischen den Relaxationszeiten bei der Absorption von
a) α -Teilchen in einem Siliziumabsorber in Kontakt zu einem dielektrischen $TmAGEr$ -Sensor, ($T = 150\text{ mK}$, nach [Büh93]),
b) einem γ -Quant in einem metallischen $AuEr$ -Sensor ($T = 25\text{ mK}$).

Man beachte die unterschiedlichen Zeitskalen.

In Abb. 3.3 a) ist der Zeitverlauf des Kalorimetersignals bei der Absorption eines $5,5\text{ MeV}$ α -Teilchens in einem Silizium-Absorber dargestellt, der an einen mit Erbium dotierten dielektrischen Sensor aus einem Tulium-Aluminium-Granat ($TmAG$) gekoppelt wurde. [Büh93] Dieses Material besitzt im Vergleich zu anderen dielektrischen Materialien bereits schnelle Relaxationszeiten zwischen dem Kristallgitter und dem System der magnetischen Momente. Die Betriebstemperatur betrug hier $T = 150\text{ mK}$. In Teilbild b) ist der Zeitverlauf bei der direkten Absorption eines 122 keV γ -Quants in einem metallischen $AuEr$ -Sensor dargestellt. Trotz der geringeren Betriebstemperatur von $T = 25\text{ mK}$ sind die Zeitkonstanten sowohl für den Signalanstieg als auch den -abfall um Größenordnungen kleiner. Die Zeitkonstante des Signalanstiegs betrug in diesem Fall ca. $10\ \mu\text{s}$ und war ausschließlich durch die SQUID-Ausleseelektronik limitiert.

Dieser entscheidende Vorteil von metallischen Sensormaterialien hat jedoch seinen Preis. Die Leitungselektronen tragen zur Gesamtwärmekapazität des Sensors bei, und sie fungieren außerdem als Medium für die indirekte Austauschwechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten, die ihrerseits die thermodynamischen Eigenschaften des Sensors wesentlich beeinflusst. Das Verständnis dieser Wechselwirkung ist für die Optimierung des *metallischen* magnetischen Kalorimeters von großer Bedeutung. Aus diesem Grund soll die Beschreibung und die Modellierung dieser Wechselwirkung in Abschnitt 3.4 ausführlich behandelt werden.

Das Sensormaterial wurde aus den Rohmaterialien, Gold des Reinheitsgrades 5N, und isotonenangereicherte Erbium in einem Lichtbogenofen⁶ erschmolzen. Eine Konzentrationsbestimmung der magnetischen Momente erfolgte anhand von Magnetisierungsmessungen mit Hilfe eines kommerziellen, kalibrierten Magnetometers.⁷

3.3 Isolierte magnetische Momente

Im externen Magnetfeld erfahren die Energieniveaus der magnetischen Momente der Er^{3+} -Ionen eine *Zeeman*-Aufspaltung. Aus diesem Grund soll das System der isolierten Elektronenspins im Folgenden als *Zeeman*-System bezeichnet werden.

3.3.1 Kristallfeld

Wie erwähnt, werden die $4f$ -Orbitale durch die $5s$ - und $5p$ -Orbitale gegen das Kristallfeld abgeschirmt. Dadurch liegt hier in guter Näherung die LS-Kopplung vor,⁸ und die Drehimpulse \mathbf{S} , \mathbf{L} und \mathbf{J} lassen sich durch die Hundschen Regeln berechnen. Für das Grundzustandsmultiplett von Er^{3+} ergibt sich $J = 15/2$, $L = 6$ und $S = 3/2$. Dessen magnetisches Moment $\boldsymbol{\mu}$ durch

$$\boldsymbol{\mu} = g_{\Lambda} \mathbf{J} \quad \text{mit} \quad g_{\Lambda} = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} = \frac{6}{5}. \quad (3.5)$$

gegeben ist. In dieser Darstellung wurde für den Landé-Faktor des Drehimpulses des Elektrons $g = 2$ gesetzt.

Der energetische Abstand zwischen dem Grundzustandsmultiplett ($J = 15/2$) und dem niedrigsten angeregten Multiplett ($J = 13/2$) beträgt 6500 cm^{-1} [Abr70]⁹, weshalb eine thermische Besetzung selbst bei Zimmertemperatur vernachlässigt werden darf. Diese Näherung ist für alle Ionen der Seltenerdmetalle, mit Ausnahme von Sm^{2+} , Sm^{3+} und Eu^{3+} , gewährleistet.

Die Entartung des Grundzustandsmultipletts wird jedoch durch das Kristallfeld teilweise aufgehoben. Für den Gesamtdrehimpuls $J = 15/2$ des Er^{3+} erzeugt die Kristallfeldaufspaltung jeweils ein Γ_6 - und Γ_7 -Doublett und drei Γ_8 -Quartetts, deren Gesamtaufspaltung über $100 \text{ K} \cdot k_{\text{B}}$ beträgt. Bereits Ende der 1960er-Jahre wurde mit Hilfe von EPR- und magnetische Suszeptibilitätsmessungen [Tao71][Wil69] gezeigt, dass der Grundzustand ein Γ_7 -Doublett ist.

In der kubischen Symmetrie kann der \mathbf{g} -Tensor des Γ_7 -Doubletts durch einen Skalar, den effektiven Landé-Faktor \tilde{g} beschrieben werden, für den $\tilde{g} = 34/5$ gilt. Williams und Hirst [Wil69] bestimmten die Kristallfeldparameter für das AuEr -System, in der Notation von Lea, Leask und Wolf [LLW62], zu $x = -0,33$ und $W = 0,257$. Daraus folgt eine Niveaubefolge, mit dem Grundzustandsmultiplett

⁶Ganz besonderer Dank gilt an dieser Stelle Herrn Prof. Braun (Universität Bayreuth) für die freundliche Hilfe bei der Herstellung der Sensormaterialien.

⁷Diese Messungen wurden an der Universität Bayreuth durchgeführt.

⁸Siehe auch [Abr70], S. 597.

⁹Die Einheit cm^{-1} ist spektroskopischen Ursprungs. $1 \text{ cm}^{-1} \approx 0,124 \text{ meV}$.

startend, $\Gamma_7 - \Gamma_8^{(1)} - \Gamma_6 - \Gamma_8^{(2)} - \Gamma_8^{(3)}$, wobei die hochgestellten Zahlen nur eine Nummerierung wiedergeben. Der Energieabstand zwischen dem Γ_7 -Grundzustandsdoublett und dem ersten angeregten Multiplett, dem $\Gamma_8^{(1)}$ -Quartett, wurde von verschiedenen Autoren mit unterschiedlichen Methoden bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tab. 3.1 zusammengefasst.

$E_{\Gamma_8^{(1)}} - E_{\Gamma_7}$ ($\text{K} \cdot k_B$)	Methode	Autor
19	Gleichfeldsuszeptibilität	[Wil69]
16 ± 6	ESR	[Dav73]
11 ± 2	Hyperfein-Resonanz-Spektroskopie	[Sjo75]
17 ± 0.5	Neutronenstreuung	[Hah92]

Tabelle 3.1: Abstand des angeregten $\Gamma_8^{(1)}$ -Zustandes zum Grundzustand Γ_7

Aus dem oben gesagten folgt, dass sich das AuEr-System bei den typischen Betriebstemperaturen von $T < 100$ mK als Zwei-Niveausystem mit einem effektiven Spin von $\tilde{S} = 1/2$ und $\tilde{g} = 34/5$ beschreiben lässt, da die höheren Multipletts thermisch nahezu unbesetzt sind. Beim Übergang zu höheren Temperaturen $T > 1$ K müssen die angeregten Niveaus berücksichtigt werden. Für $T \gg 100$ K kann die Kristallfeldaufspaltung vernachlässigt werden und es gilt $J = 15/2$ und $g_\Lambda = 6/5$ für das freie Er^{3+} -Ion.

Dieser Übergang vom Grenzfall für tiefe zu dem für hohe Temperaturen ist in Abb. 3.4 verdeutlicht. Hier ist die Magnetisierung einer AuEr-Probe als Funktion der inversen Temperatur dargestellt. Die eingezeichneten Geraden repräsentieren die beschriebenen Grenzfälle. Für $1/T \rightarrow 0$ zeigt die Probe den für Gold erwarteten diamagnetischen Beitrag.¹⁰ Aus dem Verlauf der Magnetisierung lässt sich der

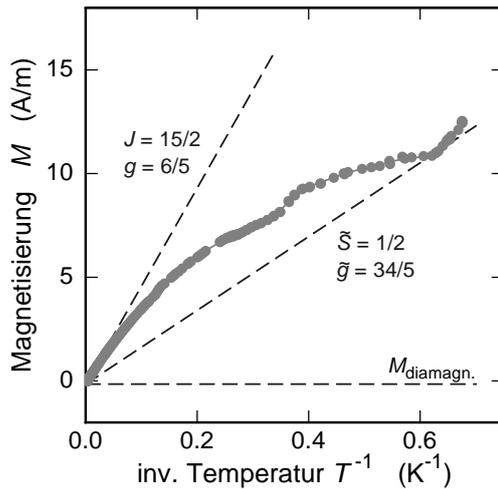


Abbildung 3.4:

Magnetisierung einer AuEr-Probe mit einer Konzentration von 760 ppm in einem Magnetfeld von 5,5 mT. Die gestrichelten Linien zeigen die Verläufe, die für hohe und tiefe Temperaturen, bzw. durch den Diamagnetismus von Gold zu erwarten sind.

Energieabstand zwischen dem Γ_7 -Doublett und dem $\Gamma_8^{(1)}$ -Quartett abschätzen, der

¹⁰Die leichte 'Welligkeit' im Verlauf der Datenpunkte ist mit hoher Wahrscheinlichkeit ein Artefakt, das auf den Messaufbau zurückzuführen ist. Dieser Effekt wurde auch bei Magnetisierungsmessungen an anderen Proben beobachtet.

in Übereinstimmung mit den oben genannten Werten ist.[Fle00]

3.3.2 Thermodynamische Beschreibung

Im vorherigen Abschnitt wurde dargestellt, dass der Grundzustand des Er^{3+} bei tiefen Temperaturen als einfaches Zwei-Niveausystem beschrieben werden kann. Für die zunächst als isoliert betrachteten magnetischen Momente können die thermodynamischen Größen Magnetisierung M und Wärmekapazität C in analytischer Form berechnet und in die Transferfunktion (Gl. 3.3) eingesetzt werden. Im Gegensatz zu den in Kapitel 2 dargestellten Konzepten ist es daher möglich, das Kalorimeter-signal als Funktion der Temperatur T basierend auf einfachen thermodynamischen Gesetzmäßigkeiten zu berechnen, um so beispielsweise das optimale Magnetfeld B_{opt} zu bestimmen.

Die Grundlage einer thermodynamischen Beschreibung ist die Wahl eines geeigneten thermodynamischen Potentials. Wir wählen hier die freie Energie F mit dem dazugehörigen vollständigen Differential

$$dF = -SdT - VMdB \underbrace{-pdV}_{=0}, \quad (3.6)$$

wobei der Term für die Volumenänderung im vorliegenden Fall vernachlässigt werden kann. Die freie Energie F wird in der Statistischen Physik als

$$F = -Nk_{\text{B}}T \ln z \quad (3.7)$$

angegeben. Hier ist N die Anzahl der magnetischen Momente im betrachteten System, k_{B} die Boltzmann-Konstante und z die *Einteilchen*-Zustandssumme

$$z = \sum_i e^{-\frac{E_i}{k_{\text{B}}T}}. \quad (3.8)$$

Die Größen E_i sind die Energieeigenwerte *eines* einzelnen magnetischen Moments, d.h. im vorliegenden Fall die Eigenwerte des Γ_7 -Grundzustandmultiplikts. Aus diesen Ausdrücken lassen sich nun die benötigten Größen ableiten:

$$C = \frac{N}{k_{\text{B}}T^2} \left\{ \langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2 \right\}, \quad (3.9)$$

$$M = -\frac{N}{V} \left\langle \frac{\partial E}{\partial B} \right\rangle, \quad (3.10)$$

$$\frac{\partial M}{\partial T} = -\frac{N}{Vk_{\text{B}}T^2} \left\{ \left\langle E \frac{\partial E}{\partial B} \right\rangle - \langle E \rangle \left\langle \frac{\partial E}{\partial B} \right\rangle \right\}. \quad (3.11)$$

Hier ist $\langle X \rangle$ der thermodynamische *Einteilchen*-Erwartungswert der Größe X im kanonischen Ensemble

$$\langle X \rangle = \frac{1}{z} \sum_i X_i e^{-\frac{E_i}{k_{\text{B}}T}}. \quad (3.12)$$

Wenden wir nun diese Ausdrücke auf die Energieeigenwerte des Γ_7 -Doublets unter Berücksichtigung des äußeren Magnetfeldes an. Der Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}^{\text{Zeeman}} = -\tilde{g}\mu_B\tilde{S}B \quad (3.13)$$

besitzt die Energieeigenwerte

$$E_{m_{\tilde{S}}} = m_{\tilde{S}}\tilde{g}\mu_B B. \quad (3.14)$$

Die Größe $m_{\tilde{S}}$ bezeichnet die magnetische Quantenzahl des effektiven Spin $\tilde{S} = 1/2$ im Γ_7 -Doublet und besitzt die Werte $\pm 1/2$, \tilde{g} ist der effektive Landé-Faktor, μ_B das Bohrsche Magneton und B das Magnetfeld. Aus Gl. 3.9 folgt nun die Wärmekapazität der magnetischen Momente im äußeren Magnetfeld:

$$C_{\text{Spin}} = Nk_B \left(\frac{E}{k_B T} \right)^2 \frac{e^{E/k_B T}}{(e^{E/k_B T} + 1)^2}. \quad (3.15)$$

Dieser Beitrag wird auch *Schottky-Anomalie* genannt. Abb. 3.5 zeigt den charakteristischen Temperaturverlauf für zwei Magnetfelder. Das ausgeprägte Maximum liegt für das Magnetfeld von $B = 2 \text{ mT}$ bei etwa 6 mK . Wie man leicht zeigen kann, gilt für diesen Fall bei einer Betriebstemperatur von 30 mK der Ausdruck

$$C_{\text{Spin}} \approx Nk_B \left(\frac{E}{k_B T} \right)^2 \quad (3.16)$$

in guter Näherung.

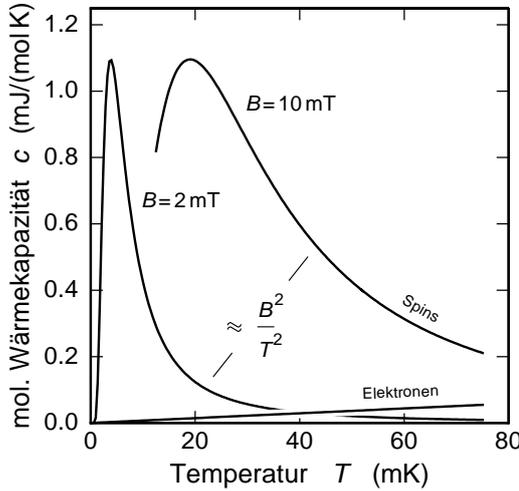


Abbildung 3.5:

Berechnete Beiträge zur Wärmekapazität einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion der Temperatur T für zwei Magnetfelder B . Die Wärmekapazität der magnetischen Momente zeigt ein deutlich ausgeprägtes Maximum bei tiefen Temperaturen. Für $B = 2,0 \text{ mT}$ und $T > 40 \text{ mK}$ ist die Wärmekapazität der Leitungselektronen größer als die der magnetischen Momente (Spins).

Zum Vergleich ist in der Abbildung auch der lineare Verlauf der Wärmekapazität der Leitungselektronen eingezeichnet. Diese ist bei der gewählten Erbiumkonzentration von 300 ppm und einem Magnetfeld von $B = 2,0 \text{ mT}$ und Temperaturen $T \gtrsim 40 \text{ mK}$ größer als die Wärmekapazität der magnetischen Momente. Unterhalb dieser Temperatur wird die Gesamtwärmekapazität jedoch deutlich vom Beitrag der magnetischen Momente dominiert. Das ist von besonderer Wichtigkeit, da auf diese Weise sichergestellt wird, dass der Hauptanteil der absorbierten Photonenenergie

vom System der magnetischen Momente aufgenommen wird, in dem er als Änderung der Magnetisierung sichtbar wird. Das bedeutet insbesondere, dass die Konzentration grundsätzlich genügend groß gewählt werden muss, so dass die Wärmekapazität der magnetischen Momente größer oder gleich der Wärmekapazität der Leitungselektronen ist. Allerdings darf sie nicht zu groß gewählt werden, da sonst die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten zu stark wird. Eine Diskussion des Einflusses und der Mechanismen der Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten der Erbium-Ionen in Gold wird in Abschnitt 3.4.1 folgen.

Auch für die Magnetisierung M resultiert aus der Zeeman-Aufspaltung des Γ_7 -Doubletts eine bekannte Gesetzmäßigkeit:

$$M = \frac{N}{V} \tilde{g} \tilde{S} \mu_B \mathcal{B}_{\tilde{S}}(h), \quad (3.17)$$

wobei $h = \tilde{S} \frac{\tilde{g} \mu_B B}{k_B T}$ gesetzt wurde und $\mathcal{B}_{\tilde{S}}(h)$ die Brillouin-Funktion mit

$$\mathcal{B}_{\tilde{S}}(h) = \frac{2\tilde{S} + 1}{2\tilde{S}} \coth \left[\frac{(2\tilde{S} + 1)h}{2\tilde{S}} \right] - \frac{1}{2\tilde{S}} \coth \left[\frac{h}{2\tilde{S}} \right] \quad (3.18)$$

bezeichnet. Für $\tilde{g} \mu_B B \ll k_B T$ folgt $\mathcal{B}_{1/2}(h) = \tanh(h) \rightarrow h$ und damit

$$M \approx \mu_0 \frac{N}{V} \tilde{S}(\tilde{S} + 1) \frac{(\tilde{g} \mu_B)^2}{3k_B T} H = \frac{\lambda}{T} H, \quad (3.19)$$

wobei μ_0 die Permeabilität des Vakuums ist. Dieser Ausdruck ist das bekannte *Curie-Gesetz*, λ die Curie-Konstante. In Abb. 3.6 ist der nach Gl. 3.17 berechnete Temperaturverlauf der Magnetisierung für isolierte magnetische Momente der Erbiumionen in Gold in einem äußeren Magnetfeld von $B = 5$ mT dargestellt. Ebenfalls eingezeichnet ist die Curie-Näherung, die für hohe Temperaturen und kleine Magnetfelder eine gute Beschreibung liefert.

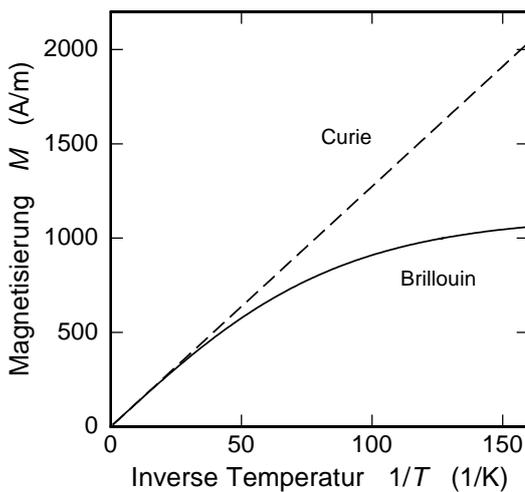


Abbildung 3.6:

Magnetisierung M einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion der inversen Temperatur $1/T$ in einem Magnetfeld von 5 mT. Dargestellt sind der durch die Brillouin-Funktion bestimmte Verlauf sowie die Curie-Näherung für hohe Temperaturen.

Mit Gl. 3.17 und der Transferfunktion (Gl. 3.3) ist somit die analytische Berechnung des Kalorimetersignals unter der Annahme *isolierter* magnetischer Momente

möglich. Bei der Analyse der Messergebnisse wird jedoch sichtbar werden, dass eine quantitative Übereinstimmung nur erzielt werden kann, wenn die Wechselwirkung der magnetischen Momente untereinander mit berücksichtigt wird.

Und das ist im Grunde nicht überraschend. Unter der Annahme, dass die magnetischen Momente als wechselwirkungsfrei betrachtet werden, dürfte man deren Konzentration beliebig groß wählen. Es ist jedoch bekannt, dass die Er^{3+} -Spins bei sehr großen Konzentrationen antiferromagnetisch ordnen, wobei die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung und damit das Kalorimetersignal verschwinden (vergl. Abschnitt 3.4.2).

3.4 Wechselwirkende magnetische Momente

Die Wechselwirkung der magnetischen Momente untereinander wird im Falle des hier diskutierten *AuEr*-Sensormaterials durch die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung und die indirekte Austauschwechselwirkung, die sogenannte RKKY-Wechselwirkung bestimmt. Die direkte Austauschwechselwirkung, resultierend aus dem Überlapp der Wellenfunktionen zweier benachbarter magnetischer Momente kann aufgrund der geringen räumlichen Ausdehnung der magnetischen $4f$ -Orbitale vernachlässigt werden. Die beiden dominierenden Mechanismen und deren Hamilton-Operatoren sollen im Folgenden genauer beschrieben werden.

3.4.1 Wechselwirkungsmechanismen

Magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung

Die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung wird durch den aus der klassischen Physik bekannten Ausdruck für die Energie magnetischer Dipole $\boldsymbol{\mu}_i$ und $\boldsymbol{\mu}_j$ an den Orten \mathbf{r}_i und \mathbf{r}_j zu

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{Dipol}} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{1}{r_{ij}^3} \left(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j - 3(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) \right) \quad (3.20)$$

angegeben. Hier ist $\hat{\mathbf{r}}_{ij}$ der Einheitsvektor in Richtung $\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$, und r_{ij} der Abstand der Dipole, hier der magnetischen Momente. Durch die skalare Eigenschaft des effektiven Landé-Faktors des Γ_7 -Doublets, kann man die Spin-Operatoren $\tilde{\mathbf{S}}_1$ und $\tilde{\mathbf{S}}_2$ einführen:

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{Dipol}} = \frac{\mu_0}{4\pi} (\tilde{g}\mu_B)^2 \frac{1}{r_{ij}^3} \left(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j - 3(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\tilde{\mathbf{S}}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) \right). \quad (3.21)$$

Um im nächsten Abschnitt die Stärke der RKKY-Wechselwirkung in Bezug auf die der Dipol-Dipol-Wechselwirkung angeben zu können, wird der im Modell des freien Elektronengases berechnete Fermi-Wellenvektor der Leitungselektronen in Gold mit dem Wert $k_F = 1,21 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1}$ eingeführt[Ash76], und es ergibt sich

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{Dipol}} = \underbrace{\frac{\mu_0}{4\pi} (\tilde{g}\mu_B)^2 (2k_F)^3}_{\Gamma_{\text{Dipol}} = 0,0343 \text{ eV}} \frac{1}{(2k_F r_{ij})^3} \left(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j - 3(\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\tilde{\mathbf{S}}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij}) \right). \quad (3.22)$$

Dieser Ausdruck zeigt die für die dipolare Wechselwirkung bekannte Anisotropie. Im Gegensatz dazu ist die RKKY-Wechselwirkung selbst in der verwendeten Form isotrop, wie im Folgenden gezeigt werden soll.

RKKY-Wechselwirkung

Die Beschreibung einer *indirekten* Wechselwirkung zweier magnetischer Momente geht in ihrem Ursprung auf M. Ruderman und C. Kittel [Rud54] zurück. Sie formulierten die Wechselwirkung der magnetischen Momente zweier Kernspins durch die Leitungselektronen. T. Kasuya [Kas56] und K. Yosida [Yos57] erweiterten dieses Konzept auf die indirekte Wechselwirkung zwischen unvollständig gefüllten Orbitalen von paramagnetischen Ionen. Diese Wechselwirkung wird 'RKKY-Wechselwirkung' genannt; eine Bezeichnung, die aus den Anfangsbuchstaben der oben genannten Autoren gebildet wurde.

Im Folgenden soll die Ableitung des Hamilton-Operators der RKKY-Wechselwirkung zweier magnetischer Momente an den Orten \mathbf{r}_i und \mathbf{r}_j angedeutet werden.¹¹

Für den Hamilton-Operator gelte die störungstheoretische Beschreibung

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I, \quad \text{mit } \mathcal{H}_I = \mathcal{J} \left(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}(\mathbf{r}_i) + \mathbf{S}_j \cdot \mathbf{s}(\mathbf{r}_j) \right). \quad (3.23)$$

Hier steht \mathcal{H}_0 für den Hamilton-Operator der ungestörten Leitungsbandelektronen und der $4f$ -Elektronensysteme. \mathbf{S}_i und \mathbf{S}_j sind die wahren Spins der beiden $4f$ -Systeme¹² und $\mathbf{s}(\mathbf{r})$ ist der Spinoperator der freien Elektronen im Leitungsband. Die Größe \mathcal{J} ist der Parameter, der die Stärke der Austauschwechselwirkung zwischen den Leitungsband und dem $4f$ -System angibt. Der Wechselwirkungsterm \mathcal{H}_I soll als kleine Störung betrachtet werden, was einen störungstheoretischen Ansatz rechtfertigt.

In erster Ordnung ergibt sich eine Korrektur der Eigenfunktionen, welche die bekannte räumlich oszillierende Spinpolarisation beschreibt. In zweiter Ordnung folgt eine Verschiebung der Energieeigenwerte. Nachdem im weiteren Weg der Ableitung alle Freiheitsgrade der Leitungselektronen ausintegriert werden, hat diese Korrektur die Form

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}} = \mathcal{J}^2 \frac{4 V_P^2 m_e^* k_F^4}{\hbar^2 (2\pi)^3} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) F(2 k_F r_{ij}) \quad (3.24)$$

mit der Kittel-Funktion

$$F(\rho) = \rho^{-3} \left(\cos \rho - \frac{1}{\rho} \sin \rho \right), \quad (3.25)$$

wobei V_P das Volumen der primitiven Elementarzelle, m_e^* die effektive Masse der freien Elektronen des Wirtsmaterials, und \mathcal{J} die in Gl. 3.23 definierte Stärke der Austauschenergie ist. In der Rechnung wurde angenommen, dass jedes Atom des

¹¹Für eine vollständige Ableitung sei beispielsweise auf das bekannte Lehrbuch von C. Kittel verwiesen. [Kit89]

¹²Unter dem Begriff 'wahrer' Spin wird hier der Gesamtspin \mathbf{S} eines Erbiumions verstanden, der zusammen mit dem Gesamtdrehimpuls \mathbf{L} über die LS-Kopplung den Gesamtdrehimpuls \mathbf{J} ergibt.

Gitters *ein* Elektron an das Leitungsband abgibt, und dass für diese Elektronen eine quadratische Dispersionsrelation gilt.

Durch die LS-Kopplung sind im Falle der Er^{3+} -Ionen in Gold die *wahren* Spins \mathbf{S} mit dem Bahndrehimpuls \mathbf{L} zum Gesamtdrehimpuls \mathbf{J} gekoppelt, so dass der Ausdruck 3.24 nicht direkt anwendbar ist. Wenn wie hier keine Mischung von Multipletts verschiedener J vorliegt (vergl. Abschnitt 3.3.1), dann kann der *wahre* Spin \mathbf{S} auf den Gesamtspin \mathbf{J} projiziert werden.[DeG58][Liu61] Aus den Identitäten für den Drehimpuls $\mathbf{L} + \mathbf{S} = \mathbf{J}$ und das magnetische Moment $\mathbf{L} + 2\mathbf{S} = g_\Lambda \mathbf{J}$ folgt die Projektion von \mathbf{S} auf \mathbf{J}

$$\mathbf{S} = (g_\Lambda - 1)\mathbf{J}. \quad (3.26)$$

Da mit dem skalaren effektiven Landé-Faktor \tilde{g} des Γ_7 -Grundzustandsmultipletts für das magnetische Moment μ die Identität

$$\tilde{g}\tilde{\mathbf{S}} = \mu = g_\Lambda \mathbf{J} \quad (3.27)$$

gilt, kann der Hamilton-Operator Gl. 3.24 nun für den Quasi-Spin $\tilde{\mathbf{S}}$ angegeben werden¹³:

$$\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}} = \underbrace{\mathcal{J}^2 \frac{\tilde{g}^2 (g_\Lambda - 1)^2}{g_\Lambda^2} \frac{4V_p^2 m_e^* k_F^4}{\hbar^2 (2\pi)^3}}_{\Gamma_{\text{RKKY}}} (\tilde{\mathbf{S}}_i \cdot \tilde{\mathbf{S}}_j) F(2k_F r_{ij}). \quad (3.28)$$

$\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}}$ nimmt also die *Heisenberg*-Form an und ist isotrop. Genauere Betrachtungen der störungstheoretischen Terme höherer Ordnung in der Entwicklung von Liu [Liu61] zeigen auch anisotrope Beiträge, die für Er^{3+} ca. 10% von $\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}}$ betragen können[Kap63], jedoch in der weiteren Diskussion vernachlässigt werden sollen.

Die RKKY-Wechselwirkung ist oszillatorisch im Bezug auf den räumlichen Abstand r_{ij} zweier magnetischer Momente ' i ' und ' j '. Man spricht hier von *ferro*- und *antiferro*-magnetischer Kopplung, für den Fall, dass $J_{\text{RKKY}} = \Gamma_{\text{RKKY}} F(2k_F r_{ij})$ größer respektive kleiner Null ist. Der Hamilton-Operator aus Gl. 3.28 weist wie im Falle der Dipol-Dipol-Wechselwirkung eine r_{ij}^{-3} -Abhängigkeit auf. Daher können die Vorfaktoren in Gl. 3.22 und Gl. 3.28 direkt verglichen werden, und die relative Stärke der RKKY-Wechselwirkung lässt sich in Bezug auf die Dipol-Dipol-Wechselwirkung durch den Wechselwirkungsparameter

$$\alpha = \frac{\Gamma_{\text{RKKY}}}{\Gamma_{\text{Dipol}}} \quad (3.29)$$

ausdrücken. Diese Größe wird in Abschnitt 5 bei der Anpassung von Berechnungen an die experimentellen Daten als freier Parameter behandelt.

3.4.2 Magnetische Ordnung

Ist die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten stark genug, so werden kollektive magnetische Ordnungserscheinungen, wie z.B. das Auftreten einer *spontanen* magnetischen Ordnung ohne äußeres Magnetfeld möglich. Die bekanntesten Formen sind Ferro-, Ferri- und Antiferromagnetismus. Die Ausbildung dieser

¹³Der beschriebene Weg entspricht der Darstellung in [Abr70], Seite 496.

Formen der räumlich ausgedehnten Ordnung beobachtet man insbesondere in Materialien in denen langreichweitige Ordnung möglich ist, was durch eine regelmäßige Anordnung des Gitters (kristalline Struktur) und insbesondere der magnetischen Momente unterstützt wird.¹⁴

Neben diesen Formen der räumlich ausgedehnten Ordnung existieren auch solche, in denen nur die Nahfeldordnung von Bedeutung ist: die *Spingläser*, die seit den 1970er Jahren Gegenstand großen Interesses sind. Ein Spinglas wird als ein System beschrieben, in dem die magnetische Wechselwirkung zweier Spins zufällig ist, was beispielsweise durch eine statistische räumliche Verteilung der magnetischen Momente oder einem räumlich oszillatorischen Charakter der Spin-Spin-Wechselwirkung begünstigt wird. Unterhalb einer bestimmten Temperatur T_g beobachtet man ein Einfrieren der Spinorientierung in einen metastabilen Zustand, der nicht durch eine der oben angedeuteten räumlich ausgedehnten Ordnungen ausgezeichnet ist. Die Spingläser haben einige interessante Eigenschaften, die nun kurz beschrieben werden sollen, soweit sie für das hier beschriebene Sensormaterial von Bedeutung sind.¹⁵

In Abb. 3.7 ist ein typisches magnetisches T - x -Phasendiagramm, in diesem Fall für eine $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ -Probe dargestellt, wobei x die Konzentration des spintragenden Elements Europium (Eu) bezeichnet. In dieser Abbildung sind drei Phasen

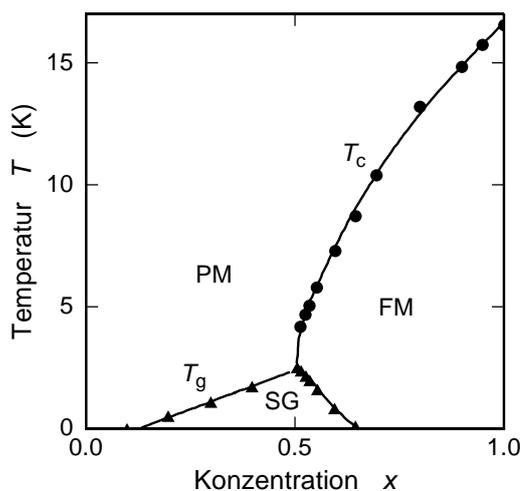


Abbildung 3.7:

Schematisches T - x -Phasendiagramm für eine $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ -Probe. Die Abkürzungen sind im Text beschrieben. Nach H. Maletta [Mal82].

gekennzeichnet: Die paramagnetische "PM", die ferromagnetische "FM" und die Spinglas-Phase "SG". Diese Phasen sind durch Phasengrenzen getrennt. Der Phasenübergang zwischen der ferromagnetischen und der paramagnetischen Phase findet bei der Curie-Temperatur T_c , und der Übergang von der paramagnetischen zu der Spinglas-Phase bei der kritischen Temperatur T_g statt. Bei geringen Konzentrationen beobachtet man eine lineare Konzentrationsabhängigkeit dieser kritischen Temperatur T_g .

Die Konzentration der magnetischen Momente in den hier beschriebenen AuEr-

¹⁴Für eine vollständige Beschreibung dieser Formen der magnetischen Ordnung sei beispielsweise auf die Buchveröffentlichung von Yosida verwiesen.[Yos96]

¹⁵Eine ausführliche Beschreibung der Natur des Spinglaszustandes und verwandten Themenbereichen ist beispielsweise in der Buchveröffentlichung von Mydosh zu finden.[Myd93]

Proben betragen einige 100 ppm bis ca. 1000 ppm. Einen Übergang von der paramagnetischen zur ferromagnetischen Phase beobachtet man bei diesen geringen Konzentrationen nicht. Dagegen ist der Übergang von der paramagnetischen zur Spinglas-Phase bei sehr tiefen Temperaturen sichtbar, was anhand von Ergebnissen der Messung der magnetischen Suszeptibilität beschrieben werden soll.

Die Messung der magnetischen Wechselfeld-Suszeptibilität zweier AuEr-Legierungen mit Spinkonzentrationen von 60 und 600 ppm ist in Abb. 3.8 als Funktion der Temperatur dargestellt [Fle00]. Die Messungen wurden in einem Wechselfeld von 16 Hz und einer Amplitude von weniger als 10^{-5} T durchgeführt. Die Gleichfeldkomponente betrug weniger als 10^{-7} T. Die Suszeptibilität zeigt ein Maximum, was eine charakteristische Eigenschaft von Spingläsern ist.¹⁶ Die kritischen Temperaturen sind $T_g = 0,25$ mK und 1,4 mK für 60 ppm respektive 600 ppm. Warum die Konzentrationsabhängigkeit von T_g hier nicht perfekt linear ist, blieb bei dieser Messung ungeklärt. Wichtig ist, dass die Magnetisierung bei Temperaturen $T < T_g$ nur noch eine sehr schwache Temperaturabhängigkeit zeigt. Daher ist ein Spinglas als Sensormaterial für ein Kalorimeter i.Allg. unbrauchbar. Für das hier diskutier-

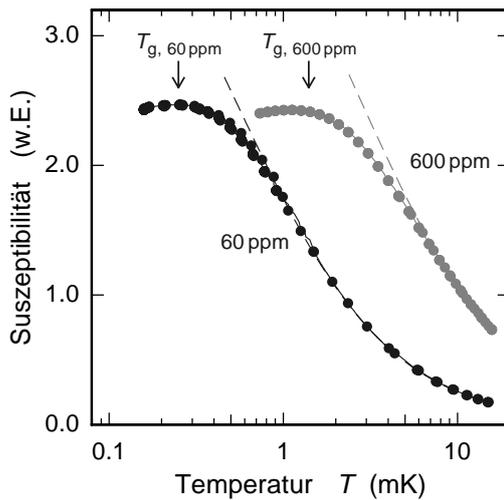


Abbildung 3.8:

Messung der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität zweier AuEr-Legierungen unterschiedlicher Konzentration in der Umgebung des Spinglasübergangs. Gestrichelt eingezeichnet ist der erwartete Verlauf in der Suszeptibilität in der Curie-Näherung. [Fle00]

te magnetischen Kalorimeter bedeutet dieses Ergebnis, dass der Spinglasübergang tatsächlich für das verwendete Sensormaterial beobachtet werden kann. Allerdings liegt dieser, selbst für eine Spinkonzentration von 600 ppm, bei einer Temperatur, die deutlich unterhalb der typischen Betriebstemperatur des Kalorimeters liegt. Dennoch erkennt man, dass bereits bei $T \gtrsim 4T_g$ eine erkennbare Reduktion der Suszeptibilität gegenüber dem vom Curie-Gesetz erwarteten Wert einsetzt. Das bedeutet insbesondere, dass die Spinkonzentration für den verwendeten Arbeitstemperaturbereich von $T \approx 30$ mK nicht deutlich größer als 1000 ppm gewählt werden sollte.

¹⁶Der qualitative Temperaturverlauf der magnetischen Wechselfeld-Suszeptibilität ist gleich dem der Gleichfeld-Suszeptibilität, für den Fall, dass beim Unterschreiten der Spinglastemperatur T_g kein magnetisches Gleichfeld angelegt wird ('zero-field cooled state' <engl.>, [Myd93]).

3.4.3 Molekularfeld-Näherung

Es sollen nun zwei Methoden dargestellt werden, mit deren Hilfe der Einfluss der Wechselwirkung auf die für das Kalorimeter wichtigen thermodynamischen Größen M und C_{Spin} untersucht werden können. Die erste Methode wendet die sogenannte Molekularfeld-Näherung an.

Betrachtet wird ein Hamilton-Operator in der Heisenberg-Form, der die Wechselwirkung eines Spins mit dem Magnetfeld und den umgebenden Nachbarspins beschreibt. Es gilt für den Spin i

$$\mathcal{H}_i = -g\mu_B \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{B} - \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (3.30)$$

Nach einer Umformung dieses Ausdruckes folgt

$$\mathcal{H}_i = -g\mu_B \mathbf{S}_i \cdot \underbrace{\left(\mathbf{B} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \frac{1}{g\mu_B} J_{ij} \mathbf{S}_j \right)}_{\mathbf{B}_{\text{eff}}}. \quad (3.31)$$

Man kann also ein *effektives* Magnetfeld \mathbf{B}_{eff} definieren, das ein quantenmechanischer Operator ist, der in komplizierter Weise von der Konfiguration der Nachbarspins abhängig ist. Durch das Ersetzen des Operators durch seinen Mittelwert im thermischen Gleichgewicht, reduziert die Molekularfeld-Näherung diese Komplexität drastisch.

In dieser Näherung gehen jedoch viele Details der Eigenschaften des physikalischen Systems verloren. Insbesondere können kollektive Phänomene, wie z.B. der Spinglasübergang mit der Molekularfeld-Näherung nicht beschrieben werden. Dennoch wird sie häufig benutzt, um Systeme wechselwirkender Spins zu beschreiben und Aussagen in oft nur grober Näherung über deren thermodynamische Eigenschaften zu treffen.

Im hier vorliegenden Fall wurde in Zusammenarbeit mit G.M. Seidel (Brown University, USA) ein auf der Molekularfeld-Näherung basierendes Computerprogramm für die Berechnung des Einflusses der Spin-Spin-Wechselwirkung auf die Größen C_{Spin} und M entwickelt.

Das Programm arbeitet nach dem Prinzip, bei dem ein *Aufspin* im fcc-Goldgitter betrachtet wird, der von bis zu $n_{\text{max}} = 6$ Nachbarspins umgeben sein kann.¹⁷ Zunächst wird das Gitter in 'Schalen' von n -ten Nachbarn identischer Symmetrie und damit gleichem Abstand zum Aufspin unterteilt. Diese Schalen werden nun in allen möglichen Permutationen mit $n \leq n_{\text{max}}$ Spins besetzt und die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten der jeweiligen räumlichen Konfiguration berechnet. Als nächster Schritt werden die Zeeman-Energie des Aufspins und die Energie der Wechselwirkung mit den Nachbarspins für deren $(2\tilde{S} + 1)^n = 2^n$ Spineinstellungen berechnet.

¹⁷Die maximale Anzahl der Nachbarspins bestimmt die benötigte Rechenzeit des Computerprogramms.

Das *Molekularfeld* verschiebt daher die beiden Zeeman-Niveaus des Aufspins. Für jede der Einstellungen der Nachbarspins werden nach Gl. 3.9-3.11 die Größen C , M und $\frac{\partial M}{\partial T}$ berechnet und die Einzelergebnisse gewichtet aufsummiert. Der Wichtungsfaktor berechnet sich aus der Wahrscheinlichkeit genau die betrachtete räumliche Konfiguration der Spins vorzufinden und dem Boltzmann-Faktor, der die Wahrscheinlichkeit beschreibt, die betrachtete Spineinstellung bei einer Temperatur T vorzufinden.

Um die benötigte Zeit in gewissen Grenzen zu halten, mussten für die Berechnungen die folgenden Annahmen gemacht und Einschränkungen in Kauf genommen werden:

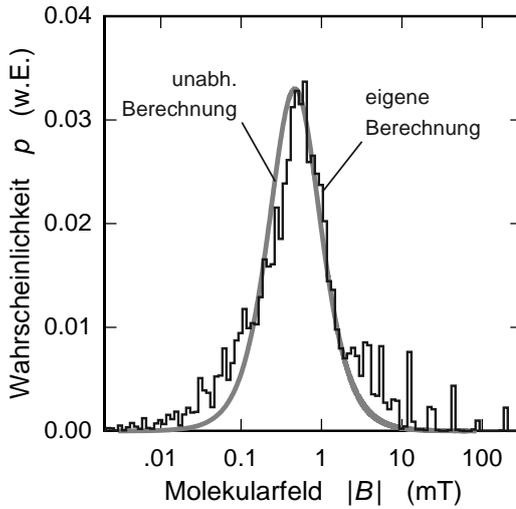
1) Die Einteilung der Gitterpositionen in 'Schalen' ermöglicht die Reduktion der drei Gitterkoordinaten auf den Abstand zum Aufspin. Dadurch werden viele Gitterpositionen als *identisch* betrachtet. Die Information zur räumlichen Anordnung geht jedoch verloren, weshalb die Dipol-Dipol-Wechselwirkung nicht berücksichtigt werden kann.

2) Es wurde das *Ising-Modell* angewendet. Das bedeutet, dass von den Spinoperatoren \mathbf{S}_i in Gl. 3.28 nur die z -Komponenten $\mathbf{S}_{i,z}$ und $\mathbf{S}_{j,z}$ berücksichtigt wurden. Damit sind $\mathcal{H}^{\text{Zeeman}}$ (3.14) und $\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}}$ im selben Basissystem diagonal. Diese Näherung ist gültig für den Fall, dass $\mathcal{H}_{ij}^{\text{RKKY}} \ll \mathcal{H}^{\text{Zeeman}}$ gilt. In diesem Grenzfall werden die Energieeigenwerte durch die Diagonalelemente von $\mathcal{H}^{\text{Zeeman}} + \mathcal{H}^{\text{RKKY}}$ bestimmt, während die vernachlässigten Nebendiagonalelemente nur eine Mischung der Eigenzustände bewirken und die Energieeigenwerte nur in zweiter Näherung beeinflussen. Eine genaue Betrachtung des hier diskutierten Systems zeigt jedoch, dass genau dieser Grenzfall nicht zwingend gilt: Wie in Abb. 3.9 veranschaulicht wird, ergeben sich selbst bei kleinen Wechselwirkungsparametern α bereits Molekularfelder von einigen mT Flussdichte! Die Näherung kann dennoch angewendet werden, weil die Nebendiagonalelemente die Eigenwerte zwar verschieben, jedoch deren mittlere Energie unverändert bleibt. Bei hohen Temperaturen werden daher die thermodynamischen Eigenschaften nur gering beeinflusst, und das Ising-Modell liefert gute Ergebnisse. Für tiefe Temperaturen, insbesondere nahe am Spinglasübergang oder für kleine Magnetfelder, ist die Näherung jedoch nur bedingt anwendbar.

3) Eine weitere Annahme betrifft die Ausrichtung der Nachbarspins. Sie wird in diesem Modell nur durch das äußere Magnetfeld (\mathbf{B}) und nicht durch das resultierende effektive Magnetfeld (\mathbf{B}_{eff} in Gl. 3.31) bestimmt. Die Annahme kann gerechtfertigt werden, da nach einer Mittelung über alle räumlichen Konfigurationen $\langle \mathbf{B}_{\text{eff}} \rangle \approx \mathbf{B}$ gilt.

4) Aus Gründen der Rechenzeit ist die betrachtete Gittergröße auf einen Radius von typischerweise $10 a_0 \approx 40 \text{ \AA}$ begrenzt worden.¹⁸ Innerhalb dieser wird die Stärke der RKKY-Wechselwirkung $\mathcal{H}^{\text{RKKY}}$ nur durch die Kittel-Funktion bestimmt (Gl. 3.25). In einem realen Gitter ist die Kohärenzlänge der Spinpolarisation jedoch durch Störstellen im Gitter limitiert. Daher sollte in Gl. 3.25 $F(\rho)$ durch $F(\rho) \exp(-\frac{\rho}{\lambda_c})$ ersetzt werden. Aus der bekannten elektrischen Leitfähigkeit

¹⁸Dieser Wert gilt für eine Spinkonzentration von 100 ppm und ist umso kleiner, je größer die Konzentration gewählt wird!

**Abbildung 3.9:**

Verteilung der Absolutwerte des Molekularfeldes einer 300 ppm AuEr-Probe in einem Gitter mit Radius $7,5 a_0 \approx 30 \text{ \AA}$.

Berechnet mit den Annahmen:

- Wechselwirkungsparameter $\alpha = 1$,
- max. 5 unabhängige Spins,
- Grenzfall $k_B T \gg \mu_B B$.

Zusätzlich eingezeichnet ist der Verlauf der aus dem analytischen Ergebnis für ein kontinuierliches Gitter folgt [Wal77][Wal80].

[Ara66] [Edw68] des Materials AuEr von $6,7 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ m/ppm}$ folgt für die Konzentration von 300 ppm eine freie Weglänge der Leitungselektronen von über 4000 \AA , welches um zwei Größenordnungen größer als der betrachtete Gitterausschnitt ist. Daher kann die endliche Kohärenzlänge der Spinpolarisation in diesem Zusammenhang vernachlässigt werden.

Bevor wir den Einfluss der Wechselwirkung der magnetischen Momente auf die thermodynamischen Größen in der Molekularfeld-Näherung diskutieren, soll eine weitere Berechnungsmethode dargestellt werden. Dadurch wird es ermöglicht, die Ergebnisse beider Methoden miteinander zu vergleichen, um ein Gefühl für die Qualität der Ergebnisse der beiden Simulationsmethoden zu gewinnen.

3.4.4 Exakte Diagonalisierung des Hamilton-Operators

Im Unterschied zu der im vorhergehenden Abschnitt vorgestellten Näherungsmethode für die Berechnung von M und C_{Spin} , wird nun eine Methode vorgestellt, welche die paarweise Wechselwirkung der magnetischen Momente in einem quantenmechanisch korrekten Modell berücksichtigt. Auf diese Weise wird eine kollektive Wechselwirkung der magnetischen Momente möglich. Dazu wird wiederum eine Gittergröße von typischerweise $(10 a_0)^3$, hier jedoch mit periodischen Randbedingungen angenommen und bis zu $n_{\text{max}} \leq 12$ magnetische Momente auf die Gitterplätze statistisch verteilt. Für die jeweilige räumliche Konfiguration der magnetischen Momente wird der Hamilton-Operator in Matrixform aufgestellt und numerisch diagonalisiert. Im Basissystem $|S_1, S_2, \dots, S_{n_{\text{max}}}\rangle$ mit den Spineinstellungen $S_i \in \{|\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle\}$ und $\mathbf{B} = (0, 0, B_z)$ gilt für die paarweise Wechselwirkung zweier Spins \mathbf{S}_1 und \mathbf{S}_2 an den Orten \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}^{\text{Zeeman}} + \mathcal{H}^{\text{Dipol}} + \mathcal{H}^{\text{RKKY}}, \text{ mit} \quad (3.32)$$

$$\mathcal{H}^{\text{Zeeman}} = -\tilde{g}\mu_{\text{B}}(S_{z1} + S_{z2})B_z, \quad (3.33)$$

$$\mathcal{H}^{\text{Dipol}} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{(\tilde{g}\mu_{\text{B}})^2}{r^3} \begin{pmatrix} -(3 \cos^2 \theta - 1) & (S_{z1}S_{z2}) \\ +1/4(3 \cos^2 \theta - 1) & (S_{+1}S_{-2} + S_{-1}S_{+2}) \\ -3/2 \sin \theta \cos \theta e^{-i\phi} & (S_{z1}S_{+2} + S_{z2}S_{+1}) \\ -3/2 \sin \theta \cos \theta e^{+i\phi} & (S_{z1}S_{-2} + S_{z2}S_{-1}) \\ -3/4 \sin^2 \theta e^{-2i\phi} & (S_{+1}S_{+2}) \\ -3/4 \sin^2 \theta e^{+2i\phi} & (S_{-1}S_{-2}) \end{pmatrix} \quad (3.34)$$

$$\mathcal{H}^{\text{RKKY}} = \alpha \frac{\mu_0}{4\pi} (\tilde{g}\mu_{\text{B}})^2 (2k_{\text{F}})^3 \left(S_{z1}S_{z2} + \frac{1}{2}(S_{+1}S_{-2} + S_{-1}S_{+2}) \right) F(\rho), \text{ mit} \\ F(\rho) = \rho^{-3} \left(\cos(\rho) - \frac{\sin(\rho)}{\rho} \right), \quad \rho = 2k_{\text{F}}r. \quad (3.35)$$

Hier sind θ der Winkel zwischen \mathbf{B} und $\hat{\mathbf{r}} = \frac{\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1}{|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1|}$ und ist ϕ der azimutale Winkel, für den ohne Beschränkung der Allgemeinheit $\phi = 0$ gesetzt werden darf. Die Größen S_+ und S_- bezeichnen die bekannten Auf- und Absteigeoperatoren. Der daraus folgende Matrix-Hamilton-Operator hat den Rang 2^n und damit 2^{2n} Elemente¹⁹. Er soll aus Gründen der Übersichtlichkeit für nur zwei wechselwirkende magnetische Momente angegeben werden:

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} |\uparrow\uparrow\rangle & |\uparrow\downarrow\rangle & |\downarrow\uparrow\rangle & |\downarrow\downarrow\rangle \\ -D_2 + \frac{1}{4}R + 2Z & -D_1 & -D_1 & -D_3 \\ -D_1 & +D_2 - \frac{1}{4}R & +D_2 + \frac{1}{2}R & +D_1 \\ -D_1 & +D_2 + \frac{1}{2}R & +D_2 - \frac{1}{4}R & +D_1 \\ -D_3 & +D_1 & +D_1 & -D_2 + \frac{1}{4}R - 2Z \end{pmatrix}, \quad (3.36)$$

mit den Variablen $Z = \underbrace{-\frac{1}{2}\tilde{g}\mu_{\text{B}}B_z}_{\text{Zeeman}}, \quad R = \alpha \frac{\mu_0}{4\pi} (\tilde{g}\mu_{\text{B}})^2 (2k_{\text{F}})^3 F(\rho) \quad \text{und} \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{\text{RKKY}}$

$$\underbrace{D_1 = \frac{3}{4} \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\tilde{g}\mu_{\text{B}}}{r^3} \cos \theta \sin \theta, \quad D_2 = \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\tilde{g}\mu_{\text{B}}}{r^3} (3 \cos^2 \theta - 1), \quad D_3 = \frac{3}{4} \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\tilde{g}\mu_{\text{B}}}{r^3} \sin^2 \theta}_{\text{Dipol - Dipol}}.$$

Die Berechnung der thermodynamischen Größen C_{Spin} , M und $\frac{\partial M}{\partial T}$ geschieht in der folgenden Weise:

Nach dem Zufallsprinzip wird die Anzahl der magnetischen Momente $n \leq n_{\text{max}}$ auf dem reduzierten Gitter ermittelt. Die Wahrscheinlichkeit für die Auswahl der Zahl n ist gleich der Wahrscheinlichkeit *exakt* n Momente bei einer gegebenen Erbiumkonzentration von dem reduzierten Gitter vorzufinden²⁰. Die n magnetischen Momente

¹⁹Jedes Element wird im Computer als Fließkommazahl mit 4 Byte Genauigkeit dargestellt. Bei 12 magnetischen Momenten ist der benötigte Speicherplatz für *eine* Hamiltonmatrix somit 64 MB. Jedes zusätzliche Moment vervierfacht diese Zahl.

²⁰Die Größe des reduzierten Gitters wird dabei gerade so festgelegt, dass die Wahrscheinlichkeit für die Zahl $n > n_{\text{max}}$ kleiner 1% ist.

werden nun auf dem Gitter zufällig verteilt. Das verwendete Sensormaterial liegt in polykristalliner Form vor, daher wird auch die Richtung des Magnetfeldes zufällig festgelegt. Damit kann nun der Matrix-Hamilton-Operator für das System für das gegebene Magnetfeld $B = B_z$ aufgestellt werden. Die Berechnung der Energieeigenwerte E_i erfolgt auf numerische Weise²¹. Mit Hilfe von Gl. 3.9-3.11 können dann die thermodynamischen Größen für eine gegebene Temperatur T berechnet werden. Um den Mittelwert der Größen mit hinreichender Genauigkeit bestimmen zu können, muss die dargestellte Berechnung, von der Auswahl der Zahl n beginnend, typischerweise 1000-fach wiederholt werden.

Wie auch zuvor bereits bei der Methode der Molekularfeld-Näherung dargestellt, wurde auch hier aus den genannten Gründen auf eine Berücksichtigung der endlichen Kohärenzlänge der Spinpolarisation der Leitungselektronen verzichtet.

Vergleich der vorgestellten Methoden

Die Unterschiede zwischen den beiden Berechnungsmethoden sollen nun kurz in einem Vergleich zusammengefasst werden, wodurch eine Beurteilung der Annahmen und der benutzten Näherungen bei der späteren Anwendung vereinfacht werden.

Zunächst werden in den beiden Methoden unterschiedliche Wechselwirkungsmechanismen angewandt, die in Abb. 3.10 gegenübergestellt sind. Im Teilbild a) ist der

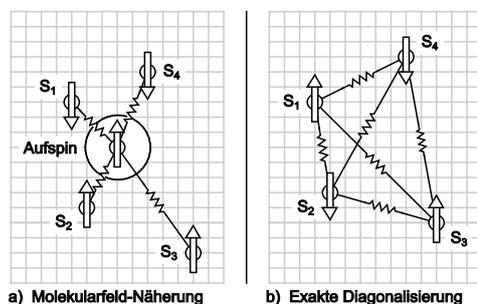


Abbildung 3.10:

Vergleich zwischen den Methoden, a) Molekularfeld-Näherung, und b) exakte Diagonalisierung für die Berücksichtigung der Wechselwirkung von in diesem Fall vier magnetischen Momenten mit den Spins S_1, \dots, S_4 .

Mechanismus veranschaulicht, welcher der Molekularfeld-Näherung zugrunde liegt. Hier wechselwirkt der zentrale Aufspin jeweils paarweise mit den einzelnen magnetischen Momenten, die zusätzlich nur die Wechselwirkung mit dem äußeren Magnetfeld erfahren. In der Methode der exakten Diagonalisierung (Teilbild b)) wechselwirken alle magnetischen Momente paarweise, wobei jedoch keines der Momente ausgezeichnet ist. Es handelt sich daher um eine Art kollektiver Wechselwirkung. Darüberhinaus wurden bei den Methoden zum Teil unterschiedliche Näherungen benutzt, die in den vorhergehenden Abschnitten bereits diskutiert wurden und an dieser Stelle tabellarisch zusammengefasst werden sollen:

²¹Es wurden eine Householder-Reduktion und daran anschließend der QL -Algorithmus der Numerical Recipes angewendet. [NuR92]

	Exakte Diagonalisierung	Molekularfeld-Näherung
Physikalische Näherungen	- isotrope Näherung der RKKY-Wechselwirkung - keine Einschränkung der Kohärenzlänge der Spinpolarisation der Leitungselektronen	
Berechnungsbedingte Näherungen	- nur paarweise WW der magnetischen Momente untereinander	- Ising-Modell - keine Dipol-Dipol-WW - nur paarweise WW des Aufspins mit <i>freien</i> Umgebungsspins
Gittergröße (Kantenlänge in Einheiten der fcc-Gitterkonstante (a_0))	13 (4x periodische Randbedingungen)	12
maximale Anzahl unabhängiger Spins	12	6

Wie man der Tabelle entnehmen kann, sind die bei der Methode der exakten Diagonalisierung gemachten Näherungen, was den physikalischen Hintergrund betrifft, deutlich weniger einschneidend. Der betrachtete Gitterausschnitt ist größer und mit mehr unabhängigen magnetischen Momenten besetzt. Randeffekte, die bei der Methode der exakten Diagonalisierung für randnah lokalisierte Spins auftreten können, werden durch die periodischen Randbedingungen effektiv unterdrückt, aber nicht völlig kompensiert.

Die Methode der exakten Diagonalisierung sollte die physikalischen Zusammenhänge der Wechselwirkung deutlich genauer beschreiben. Dennoch sollen bei der Beschreibung der experimentell bestimmten thermodynamischen Größen (vergl. Kapitel 5) beide Methoden angewandt und die zur Anpassung der Berechnungen verwendeten, unterschiedlichen Wechselwirkungsparameter α angegeben werden.

3.5 Berechnung der thermodynamischen Eigenschaften des Sensors unter Berücksichtigung der Wechselwirkung

Im vorhergehenden Abschnitt wurden zwei Verfahren vorgestellt, welche die Berücksichtigung der Wechselwirkung der magnetischen Momente bei der Berechnung der thermodynamischen Größen des Sensormaterials ermöglichen. Beide Verfahren stützen sich auf unterschiedliche Annahmen und Näherungen. Es sollen nun der Einfluss der Wechselwirkung auf die Magnetisierung M , die Wärmekapazität C_{Spin} und somit letztendlich auf das Kalorimetersignal $\delta\Phi$ (vergl. Gl. 3.3) untersucht werden.

Da die Größen experimentell zugänglich sind, kann im Kapitel 5 eine Anpassung der Berechnung an die experimentell bestimmten Größen vorgenommen werden.

In den folgenden Abschnitten soll ein AuEr-Sensormaterial mit einer Konzentration von 300 ppm betrachtet werden wie es bei den Experimenten eingesetzt wurde. Es wird die die Magnetisierung des Materials und die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit des Kalorimetersignals berechnet, wobei sowohl wechselwirkungsfreie, als auch wechselwirkende magnetische Momente angenommen werden sollen. Die Wechselwirkung wird zunächst mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung und bei der Diskussion des Verlaufs des Kalorimetersignals auch mit Hilfe der Molekularfeld-Näherung berücksichtigt. Auf diese Weise kann über einen Vergleich der Ergebnisse eine Aussage über den Grad der Übereinstimmung und damit über die Gültigkeit der angewandten Näherungen getroffen werden.

3.5.1 Magnetisierung

Die Magnetisierung des Sensormaterials wird für den Fall isolierter magnetischer Momente durch Gl. 3.19 beschrieben und deren Temperaturverlauf in Abb. 3.6 dargestellt. Unter Zuhilfenahme der Methode der exakten Diagonalisierung wird nun die Wechselwirkung der magnetischen Momente und zwar zunächst nur die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung, und im folgenden Schritt zusätzlich die RKKY-Wechselwirkung mit zwei unterschiedlichen Wechselwirkungsparametern α berücksichtigt. Das Ergebnis ist in Abb. 3.11 für zwei verschiedene Magnetfelder dargestellt.

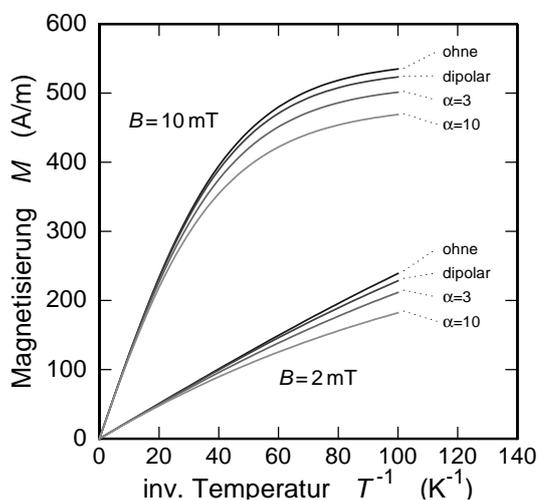


Abbildung 3.11:

Magnetisierung M einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion der inversen Temperatur $1/T$ für zwei Magnetfelder. Dargestellt sind die Ergebnisse der Berechnung ohne Wechselwirkung (ohne), mit magnetischer Dipol-Dipol-Wechselwirkung (dipolar), und zusätzlich mit RKKY-Wechselwirkung für zwei verschiedene Wechselwirkungsparameter α . Die Berechnungen wurden mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung durchgeführt.

Deutlich erkennt man, dass kein qualitativer Unterschied zwischen den dargestellten Verläufen besteht. Wie bereits in Abb. 3.6 gezeigt wurde, ist die Magnetisierung umso größer, je größer auch das Magnetfeld ist, sie nimmt monoton zu. Andererseits nimmt die Magnetisierung jedoch systematisch mit zunehmender Wechselwirkung ab. Insbesondere erkennt man deutlich, dass diese Abnahme bereits mit der Berücksichtigung der immer vorhandenen magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung erkennbar einsetzt.

Wie man sich schnell verdeutlichen kann, nimmt auf gleiche Weise auch die Größe $\frac{\partial M}{\partial T}$ ab. Das bedeutet, dass das Kalorimetersignal mit zunehmender Wechselwirkung reduziert wird.

3.5.2 Wärmekapazität

Auf ähnliche Weise betrachten wir den Einfluss der Wechselwirkung auf die Wärmekapazität des Sensormaterials. Wiederum wurde der Temperaturverlauf der Spin-Wärmekapazität mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung berechnet und in Abb. 3.12 zusammen mit dem bereits bekannten Verlauf für wechselwirkungsfreie magnetische Momente dargestellt. Zum Vergleich wurden zwei Sätze von Kurven dargestellt, die für verschiedene Magnetfelder berechnet wurden, und zusätzlich, vergleichend, die Wärmekapazität der Leitungselektronen eingezeichnet.

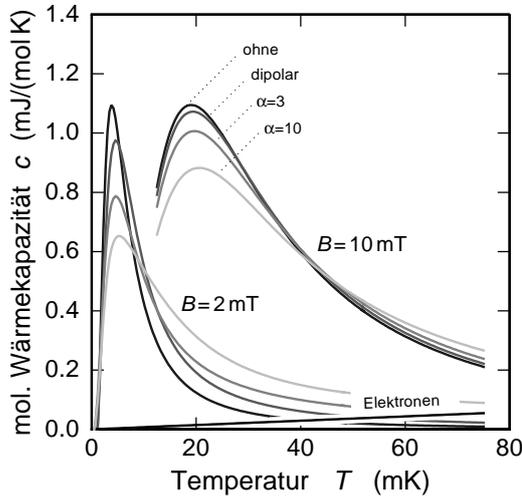


Abbildung 3.12:

Molare Wärmekapazität c einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion der Temperatur T für zwei Magnetfelder. Dargestellt sind die Ergebnisse der Berechnung ohne Wechselwirkung (ohne), mit magnetischer Dipol-Dipol-Wechselwirkung (dipolar), und zusammen mit RKKY-Wechselwirkung für zwei verschiedene Wechselwirkungsparameter α . Zusätzlich ist die Wärmekapazität der Leitungselektronen eingezeichnet.

Auch hier erkennt man deutlich, dass der Einfluss der Wechselwirkung den prinzipiellen Temperaturverlauf der Kurven nicht ändert. Dennoch ist bereits mit der Berücksichtigung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung eine Verbreiterung des Maximums und gleichzeitig eine Abnahme des Maximalwertes der Spin-Wärmekapazität und eine Erhöhung der Werte zu höheren Temperaturen hin zu beobachten. Dieser Effekt wird bei der zusätzlichen Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung noch verstärkt. Insgesamt beobachtet man Bereiche, in denen die Wärmekapazität durch den Einfluss der Wechselwirkung reduziert, und andere, in denen sie erhöht ist. Der thermodynamischen Definition der Wärmekapazität (C_V , d.h. bei konstantem Volumen V)

$$C_V = T \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right)_V \rightarrow \int dS = \int \frac{C_V(T)}{T} dT = \text{const} \quad (3.37)$$

folgend gilt, dass das Integral über $\frac{C_V}{T}$ konstant bleibt, was hier auch erfüllt ist.

Wie im folgenden Abschnitt gezeigt wird, wählt man in der Regel ein Magnetfeld von $B \approx 2 \text{ mT}$ für eine Arbeitstemperatur von $T = 20 \text{ mK}$, und $B \gtrsim 8 \text{ mT}$ für

$T = 80 \text{ mK}$, um so die Größe des Kalorimetersignals zu maximieren. Daraus folgt jedoch, dass die Wärmekapazität des Kalorimeters, für die gewählten Parameter T und B , grundsätzlich durch den Einfluss der Wechselwirkung erhöht wird.

Das hat zur Folge, dass das Kalorimetersignal durch den Einfluss der Wechselwirkung der magnetischen Momente auf zweifache Weise, d.h. durch die Reduktion der Magnetisierung *und* durch die Erhöhung der Wärmekapazität, vermindert wird.

3.5.3 Kalorimetersignal

Wir wollen nun beide Faktoren, die Reduzierung der Magnetisierung und die Erhöhung der Spin-Wärmekapazität, zusammen betrachten. Dazu wurde das Kalorimetersignal als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Temperaturen, wiederum mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung berechnet, und das Ergebnis in Abb. 3.13 dargestellt.

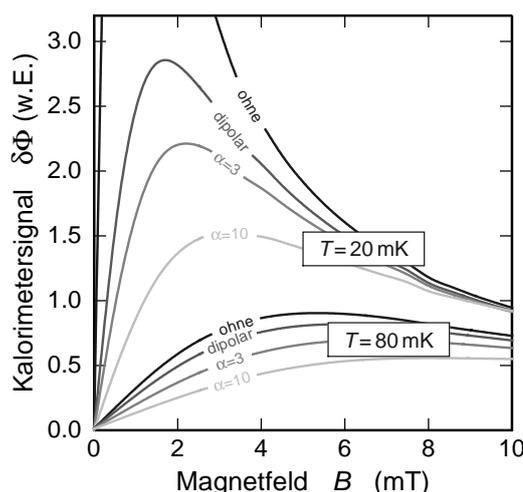


Abbildung 3.13: Kalorimetersignal $\delta\Phi$ einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion des Magnetfeldes B für zwei Temperaturen. Dargestellt sind die Ergebnisse der Berechnung ohne Wechselwirkung (ohne), unter Berücksichtigung der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung (dipolar), und mit zusätzlicher Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung für zwei verschiedene Wechselwirkungsparameter α .

Wie erwartet, ist die Höhe des Kalorimetersignals unter Berücksichtigung der Wechselwirkung gegenüber dem wechselwirkungsfreien Fall (im betrachteten Temperaturbereich) deutlich reduziert, obwohl der qualitative Verlauf der Kurven sehr ähnlich ist. Das Maximum der Magnetfeldabhängigkeit wird durch den Einfluss der Wechselwirkung zu höheren Werten hin verschoben und zusätzlich verbreitert. Allein durch den Einfluss der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung ist die Maximalhöhe bei $T = 80 \text{ mK}$ um 10 % und bei 20 mK sogar um 60 % (in der Abbildung nicht sichtbar) reduziert.

Wie unschwer zu erkennen ist, hat die Wechselwirkung starken Einfluss auf die Magnetisierung, die Wärmekapazität und damit auch auf die Größe des Kalorimetersignals. Aus diesem Grund ist die Berücksichtigung der Wechselwirkung von großer Bedeutung bei der Wahl des Sensormaterials, d.h. der Wahl der Legierungskomponenten *und* der Konzentration.

Vergleich der Berechnungsergebnisse beider Methoden

Bisher wurden sämtliche Kurvenverläufe mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung berechnet. Nun soll der Verlauf der Höhe des Kalorimetersignals zusätzlich mit Hilfe der Molekularfeld-Näherung berechnet werden. Das Ergebnis der Berechnung ist in Abb. 3.14 im Vergleich zu den oben bereits diskutierten Ergebnissen dargestellt. Um die Aussagekraft dieses Vergleichs zu erhöhen, wurde die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung bei der Anwendung der exakten Diagonalisierung explizit *ausgeschlossen*.

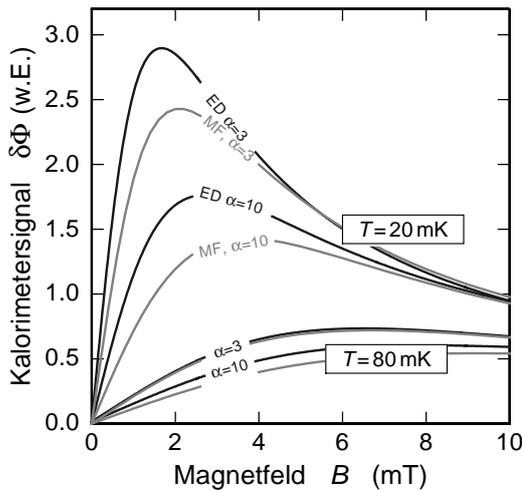


Abbildung 3.14:

Kalorimetersignal $\delta\Phi$ einer 300 ppm AuEr-Probe als Funktion des Magnetfeldes B für zwei Temperaturen. Vergleichend dargestellt sind die Ergebnisse der Berechnungen mit den Methoden der exakten Diagonalisierung (ED) und der Molekularfeld-Näherung (MF).

Der Vergleich der beiden Kurvensätze zeigt, dass für gleiche Parameter α und T qualitative Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der Anwendung der unterschiedlichen Berechnungsmethoden herrscht. Dennoch ist der quantitative Kurvenverlauf unterschiedlich, woraus folgt, dass der Einfluss der Wechselwirkung, bei gleichem Wechselwirkungsparameter α aber verschiedenen Berechnungsmethoden durchaus unterschiedlich zu bewerten ist. Scheinbar resultiert derselbe Wechselwirkungsparameter in der Molekularfeld-Näherung in einer stärkeren Wechselwirkung als unter Anwendung der exakten Diagonalisierung. Die größte quantitative Abweichung erkennt man bei tiefen Temperaturen und kleinen Magnetfeldern (hier $T = 20$ mK und $B < 5$ mT). In diesem Bereich ist die Gültigkeit der Molekularfeld-Näherung aus folgenden Gründen zunehmend eingeschränkt: In Abschnitt 3.4.3 wurde bereits gezeigt, dass das als Störung betrachtete Molekularfeld einer Verteilungsfunktion gehorcht, deren Maximum bei einem Magnetfeld von etwa 0,5 mT (für eine Erbiumkonzentration von 300 ppm und $\alpha = 1$), und somit in derselben Größenordnung wie das externe Magnetfeld liegt. Darüber hinaus wird auch die näherungsweise Beschreibung des Systems im Ising-Modell mit abnehmender Temperatur ungenauer. Auf der anderen Seite findet man gute Übereinstimmung bei großen magnetischen Flussdichten und erhöhten Temperaturen (hier $T = 80$ mK). Einzig die Kurven für vergleichsweise große Wechselwirkungen $\alpha = 10$ zeigen auch bei $T = 80$ mK eine systematische Abweichung, die wiederum ihre Begründung in den oben genannten Argumenten findet.

3.5.4 Einfluss der Spinkonzentration

Wenn der Wechselwirkungsparameter durch die Anpassung der Berechnungen an die experimentell bestimmte Magnetisierung oder Größe des Kalorimetersignals bestimmt ist, so lassen sich mit Hilfe der Berechnungen wichtige Vorhersagen treffen. Unter der Annahme, dass der für *eine* Spinkonzentration bestimmte Parameter (hier 300 ppm) eine universelle Materialkonstante ist, können auf identische Weise die Charakteristika von AuEr-Legierungen unterschiedlicher Spinkonzentration berechnet werden.

Daraus kann man für jede Arbeitstemperatur eine bestimmte *optimale* Spinkonzentration ableiten. Diese Konzentration wird so groß sein, dass die Wärmekapazität der Spins die Gesamtwärmekapazität des Sensors bestimmt. Sie wird jedoch nicht so groß sein, dass die Wechselwirkung der magnetischen Momente zu stark wird oder sogar magnetische Ordnung eintritt.

In Abb. 3.15 ist die Signalthöhe als Funktion der Konzentration für vier verschiedene Temperaturen dargestellt. Das Magnetfeld wurde für jeden Datenpunkt in der Weise optimiert, dass für die Wahl der Temperatur und der Konzentration die maximale Signalthöhe erreicht wird. In dieser Abbildung erkennt man für jede

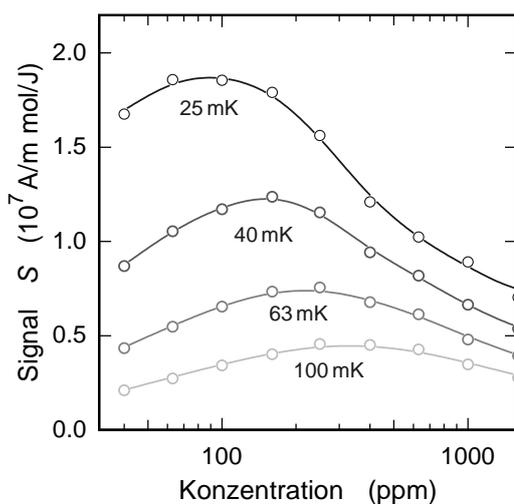


Abbildung 3.15:

Größe der zum Kalorimetersignal proportionalen Signalthöhe $S = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{1}{c}$ als Funktion der Konzentration für vier verschiedene Temperaturen. c ist die molare Wärmekapazität des AuEr-Materials. Die Wechselwirkung der magnetischen Momente wurde mit $\alpha = 10$ und der Dipol-Dipol-Wechselwirkung berücksichtigt. Die Berechnungen wurden mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung durchgeführt. Die Kurven verbinden die Datenpunkte.

der dargestellten Temperaturen ein ausgeprägtes Maximum, welches mit zunehmender Temperatur zu größeren Konzentrationen verschoben wird. Dieses Verhalten ist unmittelbar nachvollziehbar, da die zunehmende Wärmekapazität der Leitungselektronen durch die Wärmekapazität der magnetischen Momente kompensiert werden muss.²² Anhand dieser Abbildung kann man erkennen, dass die Wahl des AuEr-Materials mit einer Konzentration von 300 ppm für eine Temperatur $T \approx 100$ mK optimal ist, die Signalthöhe jedoch bei niedrigeren Temperaturen wie der tatsächlich später gewählten Betriebstemperatur von $T \approx 30$ mK um ca. 30% gegenüber der Signalthöhe eines mit 100 ppm dotierten AuEr-Sensors reduziert ist.

²²Zu beachten ist hier, dass die Wärmekapazität der magnetischen Momente auch durch das Magnetfeld bestimmt wird, dessen optimaler Wert monoton mit der Konzentration und der Temperatur ansteigt.

Erweitert man die oben beschriebenen Optimierungsberechnungen auf einen weiten Temperaturbereich, so folgt mit der Methode der exakten Diagonalisierung das in Abb. 3.16 dargestellte Ergebnis. In dieser Abbildung erkennt man, dass die Si-

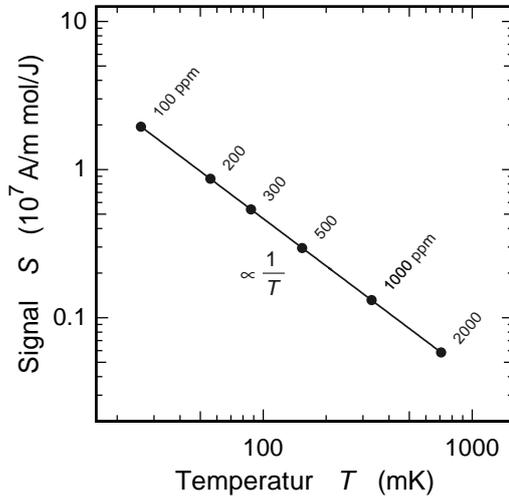


Abbildung 3.16:

Größe der Signalthöhe S für das AuEr-Material als Funktion der Temperatur den Wechselwirkungsparameter $\alpha = 10$ und unter Berücksichtigung der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Die Beschriftung der Punkte beschreibt die Konzentration der magnetischen Momente.

gnalthöhe nach der Optimierung hinsichtlich des Magnetfeldes und der Konzentration für alle dargestellten Wechselwirkungsparameter invers proportional mit steigender Temperatur abnimmt. Dieses Ergebnis ist insbesondere für die Wahl der Konzentration der magnetischen Momente im Sensormaterial (hier für das AuEr-Material) in unterschiedlichen Arbeitstemperaturbereichen bedeutsam. Darauf basierend kann die Vorhersage getroffen werden, dass die Signalthöhe für eine Temperatur $T = 1$ K auf 3,3% des Wertes für $T = 30$ mK abfällt. Während damit die Energieauflösung für den Nachweis von niederenergetischen Röntgenquanten (wie hier $E_\gamma \approx 6$ keV) erheblich eingeschränkt wird, deutet dieses Ergebnis darauf hin, dass der Nachweis von höherenergetischen γ -Quanten im Bereich von $E_\gamma \approx 200$ keV prinzipiell mit gleicher relativer Energieauflösung realisierbar ist.

Mit dem in Abb. 3.16 dargestellten Ergebnis wird deutlich, dass magnetische Kalorimeter für sehr unterschiedliche experimentelle Situationen optimiert werden können. Das beschriebene Berechnungsmodell kann auf einfache Weise erweitert werden, um die Eigenschaften unterschiedlicher Sensorlegierungen und den Einfluss der Verwendung zusätzlicher Absorber auf die Größe des Kalorimetersignals zu beschreiben. Auf eine detaillierte Darstellung der Ergebnisse dieser Rechnung soll im Rahmen der vorliegenden Arbeit verzichtet werden.

4. Experimentelle Technik

Im vorhergehenden Kapitel sind bereits einige Gründe beschrieben worden, weshalb magnetische Kalorimeter notwendigerweise bei tiefen Temperaturen betrieben werden müssen. Zum einen ist dort die Wärmekapazität des Gitters und der Leitungselektronen reduziert und die der Spins, bei geeigneter Wahl des Magnetfeldes, erhöht. Außerdem wird das eigentliche Messsignal, die Änderung des magnetischen Flusses $\Delta\Phi$ bei einer Temperaturänderung ΔT , umso größer, je tiefer die Betriebstemperatur ist (vergl. Gl. 3.19). Tatsächlich wird die Qualität des Kalorimetersignals jedoch nicht durch die Signalhöhe allein, sondern durch das sogenannte *Signal-zu-Rauschen-Verhältnis*¹ bestimmt.

Im folgenden Abschnitt wird zunächst kurz auf die Erzeugung, Messung und Regelung tiefer Temperaturen eingegangen. Danach soll die Funktionsweise und der Betrieb des SQUID-Magnetometers erläutert werden, bevor die Signalverarbeitung beschrieben wird.

4.1 Tiefe Temperaturen

Für die Erzeugung von Temperaturen unterhalb von ca. 100 mK sind heute kommerzielle Maschinen verfügbar, in denen zwei verschiedenen Techniken angewendet werden. Zum einen wird die Entmischung eines $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Gemisches bei tiefen Temperaturen in einem sogenannten *Verdünnungskryostaten* genutzt, zum anderen die adiabatische Entmagnetisierung von paramagnetischen Materialien, wie paramagnetischen Salzen. Auf eine detaillierte Darstellung dieser Techniken soll hier verzichtet werden.²

Für die Entwicklung und den Betrieb des hier beschriebenen magnetischen Kalorimeters wurde ein Verdünnungskryostat eingesetzt. Dessen *Mischkammer*, der kälteste Teil des Kryostaten, erreichte Temperaturen bis ca. 5 mK. Die Temperatur

¹Die Definition des Begriffs 'Signal-zu-Rauschen-Verhältnis' ist nicht eindeutig definiert. Wir wollen diesen Begriff hier *zunächst* als das Verhältnis zwischen Signal- und Rauschamplitude definieren. Später, bei der Diskussion der instrumentellen Auflösung des Kalorimeters (Abschnitt 7.1.2) benötigen wir eine spezielle Definition, welche die Signalamplitude und -form sowie die spektrale Verteilung des Rauschens berücksichtigt.

²Ausführliche Beschreibungen der beiden Techniken, zusammen mit anderen Methoden der Tieftemperaturtechnik sind beispielsweise in den Lehrbüchern von Lounasmaa[Lou74], Pobell[Pob95] oder Enss[Ens00] zu finden.

der Mischkammer wurde mit Hilfe eines kalibrierten Kohle-Widerstandsthermometers bestimmt.[Wei95]

Die Temperatur ist beispielsweise bei der Messung der temperaturabhängigen Magnetisierung des Sensormaterials und der genauen Einstellung der Arbeitstemperatur des Kalorimeters von Bedeutung. Zur Stabilisierung dieser Arbeitstemperatur wird ein Temperaturregler benötigt, der von einem schnellen, hochauflösenden Thermometer angesteuert wird. Als ein solches Thermometer kann das Kalorimeter selbst eingesetzt werden. Die Funktionsweise des damit angesteuerten Temperaturreglers wird in Abschnitt 4.4 beschrieben.

4.2 SQUID-Technik

Kernstück der Messung des Kalorimetersignals ist das SQUID-Magnetometer. Diese Magnetometer sind die derzeit empfindlichsten Nachweisgeräte für magnetischen Fluss. Aber auch alle anderen Messgrößen, die sich in magnetischen Fluss konvertieren lassen, wie z.B. magnetische Flussdichte, magnetische Feldgradienten, elektrischer Strom, Spannung, Auslenkung o.Ä., lassen sich mit Hilfe von SQUIDs sehr genau messen. Aufgrund der hohen Empfindlichkeit und der hohen intrinsischen Bandbreite (>100 MHz) eröffnet sich ein außerordentlich breites Anwendungsgebiet.

Im folgenden Abschnitt wird die Funktion eines SQUIDs erläutert. bevor die Anwendung des SQUIDs im magnetischen Kalorimeter beschrieben wird.

4.2.1 SQUID-Grundlagen

Entscheidend für die Funktionsweise eines SQUIDs ist die Tatsache, dass in Supraleitern eine makroskopische Wellenfunktion vorliegt. Das hat zwei Konsequenzen: Zum einen die Flussquantisierung, d.h. die Eigenschaft, dass der Fluss Φ in einer geschlossenen supraleitenden Schleife in Einheiten des elementaren Flussquants $\Phi_0 = 2,07 \cdot 10^{-15}$ Wb quantisiert ist[Lon50]. Zum anderen das Tunneln von Cooper-Paaren durch sogenannte Josephson-Kontakte[Jos62]. SQUIDs werden in verschiedenen Ausführungen entwickelt; die in dieser Arbeit verwendete Schaltungsform ist das dc-SQUID, welches aus einer supraleitenden Schleife besteht, die an zwei Stellen durch jeweils einen Josephson-Kontakt unterbrochen ist. Die folgende Beschreibung ist daher auf das dc-SQUID fokussiert und ist zusätzlich auf die für die Diskussion des magnetischen Kalorimeters wesentlichen Aspekte reduziert worden.³

Praktisch alle dc-SQUIDs werden heute in Dünnschichttechnik und in der Regel auf Silizium-Substraten hergestellt. Ein solches SQUID ist schematisch in Abb. 4.1 a) dargestellt. Man erkennt die kreisförmige Leiterschleife, die an zwei Stellen durch die Josephson-Kontakte unterbrochen ist (durch die beiden Kreuze auf dem Ring gekennzeichnet). Die Ansteuerung findet typischerweise durch den Strom I aus einer rauscharmen Konstantstromquelle statt. Als Signal dient die Spannung U_S , die über dem SQUID abfällt.

³Eine ausführliche Beschreibung des Aufbaus und der Eigenschaften verschiedener SQUIDs findet man in der Buchveröffentlichung von Weinstock.[Wei96]

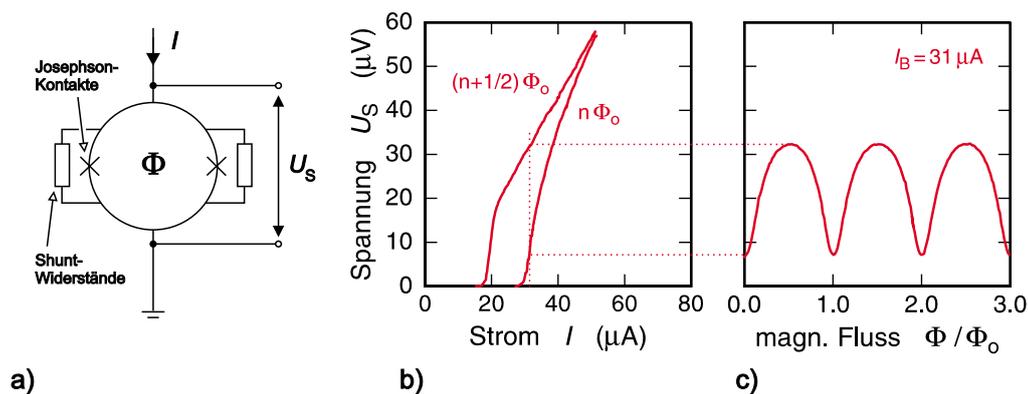


Abbildung 4.1: a) Das dc-SQUID mit geshunteten Josephson-Kontakten,
 b) Strom-Spannungs-Charakteristik für zwei verschiedene magnetische Flüsse Φ ,
 c) Spannungs-Fluss-Charakteristik für $I = I_B$.
 (Nach [Wei96], Kapitel 2.)

Die beiden Josephson-Kontakte sind jeweils mit einem Widerstand überbrückt⁴, um die sonst auftretende Hysterese in der Strom-Spannungs-Kennlinie der Kontakte zu unterdrücken [Ste68][McC68]. Der Verlauf der Strom-Spannungs-Kennlinie zweier parallelgeschalteter Kontakte ist abhängig von dem in der Leiterschleife eingeschlossenen magnetischen Fluss. In Abb. 4.1 b) ist diese Kennlinie für zwei verschiedene Flüsse Φ aufgetragen.

Wird das SQUID mit einem konstanten, sogenannten Bias-Strom⁵ I_B angesteuert, so folgt eine Spannungs-Fluss-Kennlinie, die in Abb. 4.1 c) dargestellt ist. Diese besitzt einen oszillatorischen Charakter mit einer Periode von genau einem elementaren Flussquant Φ_0 . Jede Flussänderung im SQUID (hier z.B. durch die Absorption eines Röntgenquants im Sensor) erzeugt also eine Änderung der am SQUID abgegriffenen Spannung U_S . Diese Kennlinie ist jedoch nichtlinear, weshalb das SQUID i.Allg. eine zusätzliche Beschaltung in Form einer Rückkopplung benötigt, um die Kennlinie zu linearisieren. Die Funktionsweise der in dieser Arbeit verwendeten Beschaltung wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

4.2.2 Flussrückkopplung und Modulation

Die Übertragungsfunktion des SQUID-Sensors⁶ wird linearisiert, indem die Elektronik den von außen eingekoppelten Fluss (Φ_A) mit Hilfe eines Rückkoppelflusses (Φ_F) kompensiert (FLL-Technik⁷), so dass $\Phi = \Phi_A - \Phi_F = \text{const.}$ gilt. Das Ausgangssignal ist in diesem Fall nicht die am SQUID direkt abgegriffene Spannung U_S ,

⁴Häufig wird der Begriff 'Shunt' benutzt. Shunt <engl.> (Nebenschluss).

⁵Bias <engl.> (Neigung, Hang; Bias-Strom: Zur Wahl des Arbeitspunktes benötigter Strom).

⁶Die Übertragungsfunktion des SQUID-Sensors ist hier die 'Ausgangsspannungs-Fluss-Kennlinie' des SQUIDs in Verbindung mit dessen Ansteuerungselektronik.

⁷FLL = Flux-Locked-Loop.

sondern der zur Kompensation notwendige Strom I_F , bzw. die über dem sogenannten Rückkopplungswiderstand R_F abfallende Spannung U_F (vergl. Abb. 4.2). Da die

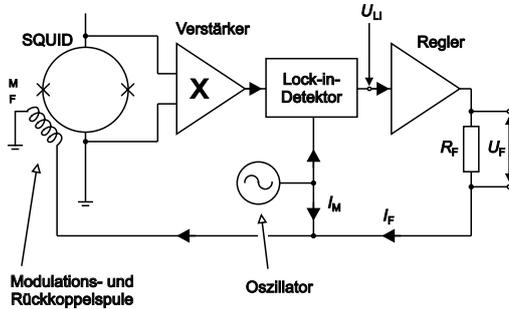


Abbildung 4.2:
Blockschaltbild der Modulations- und Rückkopplungsschaltung (FLL) zur Ansteuerung des SQUIDs.
(nach[[Cla76](#)])

SQUID-Spannung U_S nur einige μV beträgt, werden an das SQUID und dessen Ausleselektronik hohe Anforderungen in Bezug auf mögliche Rauschbeiträge gestellt.

Heute werden zwei verschiedene Grundtypen von SQUID-Auslesemethoden benutzt, die *direkte* [[Dru90](#)] und die *flussmodulierte* Methode [[Cla76](#)]. Beide wenden die oben beschriebene Flussrückkopplung an, um während des Auslesens der SQUID-Spannung den Gesamtfluss im SQUID konstant zu halten.

Die direkte Methode ist vom Prinzip her die am einfachsten aufgebaute Schaltung. Hier wird der sogenannte Arbeitspunkt (AP) in der Spannung-Fluss-Kennlinie (Abb. 4.1 c)) an einem Punkt maximaler Steilheit ($\frac{\partial U_S}{\partial \Phi}$) gewählt, und die SQUID-Spannung U_S zur Ansteuerung der Rückkopplungsschaltung direkt gemessen. Diese Methode zeichnet sich insbesondere durch die prinzipielle Einfachheit der Elektronik aus. In der Praxis zeigt sich jedoch, dass besondere Vorkehrungen getroffen werden müssen, um das SQUID-Eigenrauschen über das Eingangs-Spannungsrauschen des Vorverstärkers anzuheben, ohne das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu beeinträchtigen. Dazu wird die sogenannte APF-Technik⁸ benutzt, welche die Flankensteilheit der Spannungs-Fluss-Kennlinie des SQUID einseitig künstlich vergrößert. [[Dru90](#)]

Im Rahmen der Arbeiten am magnetischen Kalorimeter in Heidelberg wurden Vorversuche mit einem solchen SQUID-Sensor durchgeführt, welche die Anwendbarkeit der Methode für das magnetische Kalorimeter demonstrieren. [[Sol99](#)].

Für das in dieser Arbeit diskutierte integrierte magnetische Kalorimeter wurde jedoch die Flussmodulations-Methode verwendet, da zum einen das verwendete SQUID nicht für die Ansteuerung mit der APF-Technik entwickelt wurde und zum anderen auf eine bereits bewährte Technik zurückgegriffen werden konnte. Ein Blockschaltbild dieser Methode ist ein Abb. 4.2 dargestellt.

Die Rückkopplungspule ist hier neben dem eigentlichen Rückkoppelkreis zusätzlich mit einem Oszillator (Frequenz $f_M \approx 250 \text{ kHz}$) verbunden. Auf diese Weise wird in das SQUID neben dem eigentlichen Rückkoppelstrom Φ_F ein zeitlich oszillierender Modulationsstrom Φ_M mit der Amplitude $\approx 0,25 \Phi_o$ eingekoppelt. Mit der Oszillation des Gesamtflusses innerhalb der SQUID-Schleife führt auch die SQUID-Spannung U_S

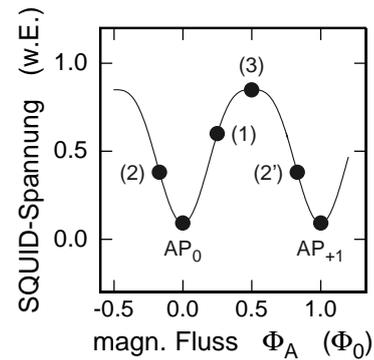
⁸APF = Additional-Positive-Feedback <engl.> (Zusätzliche positive Rückkopplung).

Schwingungen aus. Diese Spannung wird zunächst von einem bei tiefen Temperaturen befindlichen Transformator⁹ und in einer zweiten Stufe von einem Vorverstärker verstärkt, der bei Zimmertemperatur betrieben wird. Dessen Ausgang ist mit dem Signaleingang eines Lock-in-Detektors (Mischer) verbunden. Der Referenzeingang ist wiederum mit dem Ausgang des oben genannten Oszillators verbunden. Der Lock-in-Detektor bestimmt die Phasenlage der Komponente des Eingangssignals mit der Oszillatorfrequenz f_M , wodurch je nach Lage des Arbeitspunktes (AP) die folgenden Spannungen am Ausgang U_{LI} beobachtet werden können¹⁰:

AP-Lage	Äußerer Fluss	U_{LI}
AP_0	$\Phi_A = 0$	$= 0$
(1)	$0 > \Phi_A > \Phi_o/2$	> 0
(2)	$-\Phi_o/2 < \Phi_A < 0$	< 0
(3)	$\Phi_A = \pm\Phi_o/2$	$= 0$

Abbildung 4.3:

Schematische Spannungs-Fluss-Kennlinie eines SQUIDs mit verschiedenen Arbeitspunktlagen.



Exemplarisch sind verschiedene Lagen der Arbeitspunkte und deren Oszillationsbewegung, bedingt durch die Flussmodulation, angegeben, um das jeweilige Ausgangssignal des Mischer zu veranschaulichen. Es gelte nun ohne Beschränkung der Allgemeinheit $\Phi = \Phi_A - \Phi_F = 0$. Gilt zunächst $\Phi_A = 0$, dann liegt der Arbeitspunkt bei AP_0 und die Ausgangsspannung des Mischer ist $U_{LI} = 0$. Verändert sich der äußere Fluss so, dass $\Phi_A > 0$ gilt, verändert sich dieses Ausgangssignal zu $U_{LI} > 0$. Der nachgeschaltete Regler (vergl. Abb. 4.2) wird nun den Rückkoppelstrom I_F und damit den Rückkoppelfluss so verändern, dass wieder $\Phi_F = \Phi_A$ gilt. Der zur Erzeugung des Rückkoppelflusses Φ_F benötigte Strom I_F ist daher proportional zum äußeren Fluss Φ_A . Die Kennlinie ist somit linearisiert.

Steigt Φ_A jedoch viel schneller an, als der Regler den Rückkoppelfluss Φ_F verändern kann¹¹, und überschreitet Φ_A sogar Punkt (3), so ändert U_{LI} das Vorzeichen. Die Regelung korrigiert den Rückkoppelfluss Φ_F in der entgegengesetzten, 'falschen' Richtung, bis sie den neuen Arbeitspunkt mit AP_{+1} erreicht. In der Praxis werden durch eine spezielle Beschaltung der SQUID-Ausleselektronik Vorkehrungen getroffen, welche den Arbeitspunkt nach dem Eintreten dieses sogenannten *Flusssprunges* auf dem ursprünglichen Punkt AP_0 zurücksetzen.

Das Ausgangssignal des mit der Modulationsmethode betriebenen SQUID-Sensors ist nun die Spannung U_F , die über dem Rückkopplungswiderstand R_F am Ausgang des Reglers abfällt, und diese steht in linearem Zusammenhang zum äußeren Fluss

⁹Dieser Transformator befindet sich in unmittelbarer Nähe zum SQUID.

¹⁰Die Vorzeichen der Spannung U_{LI} sind von der jeweiligen Beschaltung abhängig.

¹¹Die max. Anstiegsgeschwindigkeit des Reglerausgangssignal wird durch dessen Slewrates bestimmt.

Φ_A . Damit ist das SQUID, zusammen mit der Ausleseelektronik ein lineares Bauteil.

Die Modulationsmethode hat gegenüber der direkten Methode den Vorteil, dass die Empfindlichkeit gegenüber Radiofrequenz-Störungen erheblich reduziert wird. [Koch94] Außerdem sind die Auswahlkriterien für die Verstärkerbauteile der Ausleseelektronik weniger streng, allerdings benötigt die elektronische Schaltung der Modulationsmethode mehr Bauteilkomponenten.

Ein gewisser Nachteil der Modulationsmethode ist die Einschränkung der nutzbaren Bandbreite der Ausleseelektronik auf $f \lesssim f_M/2$. Für die hier verwendete Elektronik¹² ist $f_M = 256$ kHz, weshalb die nutzbare Bandbreite ca. 100 kHz beträgt. Die maximale Slew-Rate des Systems aus Lock-in-Detektor und Regler beträgt $\approx 30 \text{ k}\Phi_o/\text{s}$.

Die direkte Methode besitzt dagegen eine deutlich höhere Bandbreite von typischerweise über 1 MHz, die nur durch die benutzten Verstärkerbauteile und die gewünschte Verstärkung limitiert ist. Damit verbunden ist häufig auch eine höhere Slew-Rate.

Eine Ausnahme im Bereich der flussmodulierten SQUID-Sensoren bildet die Entwicklung von R.H. Koch *et al.* [Koch96], ein mit 16 MHz radiofrequenz-moduliertes SQUID-System welches einen Lock-In-Detektor für Radiofrequenz-Signale verwendet. Die erreichte Bandbreite beträgt $>2,3$ MHz mit einer Slew-Rate $> 1 \cdot 10^6 \Phi_o/\text{s}$. Wie die Anwendung der direkten Methode [Sol99] handelt es sich auch hierbei um eine interessante Alternative für das bisher verwendete SQUID-System.

4.2.3 Ketchen-SQUID

Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit eingesetzte SQUID ist kommerziell erhältlich.¹³ Es wird im Folgenden *Ketchen-SQUID* genannt; ein Name, der auf dessen Entwickler M.B. Ketchen und J.M. Jaycox zurückgeht, die als Pioniere der in Dünnschichttechnologie gefertigten SQUIDs gelten. [Jay81][Ket82] Sie entwickelten das erste sogenannte Square-Washer-SQUID¹⁴, eine Bezeichnung, die auch heute noch für diese planare Geometrie benutzt wird.

In den Labors von IBM¹⁵ entwickelten M.B. Ketchen *et al.* eine Vielzahl von SQUIDs, wovon 11 Typen einer speziellen Baureihe [IBM94] durch die Firma Quantum Magnetics¹⁶ vertrieben werden. Diese SQUIDs sind auf 3 verschiedenen Chips untergebracht, die im sogenannten PARTS-Prozess¹⁷ auf Silizium-Substraten mit einer $0,6 \mu\text{m}$ -Technologie aufgebaut wurden. [Ket91]

Das für den Einsatz im hier beschriebenen magnetischen Kalorimeter ausgewählte Magnetometer-SQUID (Modell 'KMAG10-50', Chip-Typ 'SSC003') ist in Abb. 4.4

¹²pc-SQUID-System, Conductus INC., Sunnyvale, CA, USA.

¹³Lieferant: Quantum Design, San Diego, CA, USA.

¹⁴Square washer <engl.> ('Rechteckige Scheibe').

¹⁵IBM Reserarch Division, T.J. Watson Research Center, Yorktown Heights, NY, USA.

¹⁶via Quantum Design, San Diego, CA, USA.

¹⁷PARTS= Planarized All-Refractory Technology for Superconductors.

photographisch abgebildet. Dieses SQUID besitzt eine *einzelne* Detektionsspule mit einem Durchmesser von $50\ \mu\text{m}$, die Teil der SQUID-Schleife ist. Der Abstand zwischen der Spulenwindung und den Josephson-Kontakten ist mit ca. $1,2\ \text{mm}$ recht groß. Durch diese Geometrie besteht prinzipiell die Möglichkeit, ein magnetisches Feld am Ort des Sensors innerhalb der Detektionsspule anzulegen, ohne dabei die Funktion des SQUIDs durch das Magnetfeld am Ort der Josephson-Kontakte zu beeinträchtigen. Von dieser Option wurde hier jedoch kein Gebrauch gemacht, da die SQUIDs mit nur geringen Beeinträchtigungen in Magnetfeldern von bis zu $3,5\ \text{mT}$ betrieben werden konnten.¹⁸ Zum Vergleich: Für viele SQUIDs liegt das maximale Magnetfeld am Ort der Josephson-Kontakte unter $0,1\ \text{mT}$.

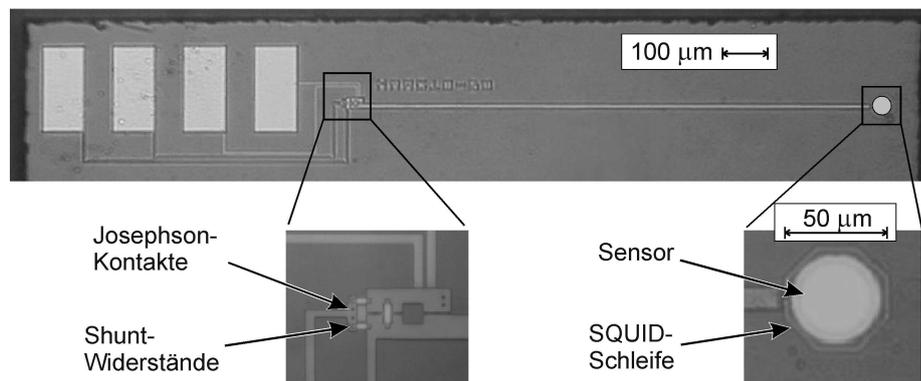


Abbildung 4.4: Photographie eines SQUID-Chips vom Typ SSC003, mit Ausschnittsvergrößerungen der Josephson-Kontakte und der Shuntwiderstände, sowie der SQUID-Schleife mit eingesetztem scheibenförmigen AuEr-Sensor.

Die Resistenz gegenüber äußeren Magnetfeldern wurde durch die Verwendung von vergleichsweise kleinen Josephson-Kontaktflächen von $1\ \mu\text{m}^2$ ermöglicht *ohne* diese mit einer supraleitenden Schicht zu unterlegen. Alle SQUIDs besitzen Josephson-Kontakte mit kritischen Stromstärken I_c von 1 bis $6\ \mu\text{A}$ die mit PtRh-Dämpfungswiderständen ($R_s = 10\ \Omega$) versehen sind. Dieses Material bleibt selbst bei den tiefsten erreichten Chip-Temperaturen ($T_{\text{Chip}} \approx 22\ \text{mK}$) normalleitend. [Ket94]

Der im Experiment gewählte, optimale Bias-Strom ist von einer Vielzahl von Parametern, insbesondere von dem an den Josephson-Kontakten herrschenden Magnetfeld, abhängig. Er wird in der Regel so gewählt, dass das weiße Rauschen des SQUIDs minimal wird. Grundsätzlich gilt für den Bias-Strom $I_{\text{Bias}} > 2 I_c$. Bei einem typischen Strom von $I_{\text{Bias}} = 20\ \mu\text{A}$ wird in den parallel geschalteten Dämpfungswiderständen eine maximale Leistung von $P = \frac{1}{2} I_{\text{Bias}}^2 R_s = 0,5\ \text{nJ}$ dissipiert. Diese scheinbar geringe Leistung reicht aus, um die wahre Chip-Temperatur um mehrere mK über die Badtemperatur anzuheben. Daher wird es notwendig, die tatsächliche Chip-Temperatur in Abhängigkeit vom Bias-Strom, als Funktion der Badtemperatur zu bestimmen (vergl. Abschnitt 6.1). Auch der Rückkoppelstrom I_F ist eine Quelle

¹⁸Experimentell geprüft wurde dies für die SQUIDs vom Typ 'KS1W10-35', Chip 'SSC001' und 'KMAG10-50', Chip 'SSC003' für Feldvektoren rechtwinklig sowie und 'KSUP10-50', Chip 'SSC001' [Nar94] parallel zur Chip-Oberfläche.

für einen geringen Wärmeeintrag, falls $I_F \neq 0$ ist. Da dieser Strom die Sensortemperatur wiedergibt und daher i.Allg. nicht konstant ist, ist auch der Wärmeeintrag und dadurch bedingt wiederum die Chip-Temperatur zeitlich veränderlich. Da das Kalorimetersignal stark temperaturabhängig ist (vergl. Abschnitt 5.4), müssen für den Betrieb des Kalorimeters mit Hilfe einer Temperaturregelung besondere Vorkehrungen getroffen werden um die Sensortemperatur auf der Betriebstemperatur zu stabilisieren (vergl. Abschnitt 4.4).

Das SQUID wird mit der flussmodulierten Methode ausgelesen, die verwendete Beschriftung ist in Abb. 4.5 dargestellt.

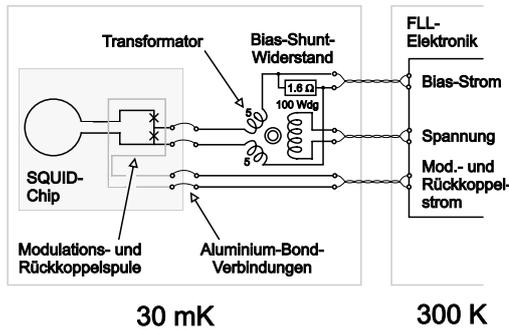


Abbildung 4.5:

Schema der Beschriftung des SQUID-Chips mit passiven Bauteilen bei 30 mK und Ansteuerung bzw. Auslesen durch Elektronik (FLL) bei Zimmertemperatur (300 K).

In der Abbildung ist die SQUID-Ausseelektronik in zwei Bereiche unterteilt. Der erste, der Tieftemperaturbereich beinhaltet das SQUID selbst und den Transformator, der zur Spannungsverstärkung der SQUID-Spannung benötigt wird. Die Primär- und Sekundärspule des Transformators sind in torodialer Geometrie auf einen Ferrit-Kern¹⁹ gewickelt. Der Bias-Shunt-Widerstand (radiale Metallfilm-Bauform, $R_{\text{Bias}} = 1,6 \Omega$, $1/8 \text{ W}$) wird benötigt, um den zunächst konstanten Bias-Strom der FLL-Elektronik am Ort der Josephson-Kontakte variieren zu können. Auf diese Weise kann die *Strom*-Änderung vom Transformator übertragen werden. Diese Beschriftung unterscheidet sich in diesem Punkt daher geringfügig von der in Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Betriebsart.

Der zweite Bereich, der die Ausseelektronik in FLL-Technik und die Konstantstromquelle für den Bias-Strom beinhaltet, wird bei Zimmertemperatur betrieben. Als Verbindung zwischen beiden Bereichen werden sechs paarweise verdrehte Leitungen von sehr guter Leitfähigkeit benötigt, die an mehreren Stellen innerhalb des Kryostaten thermisch angekoppelt wurden, um dessen Wärmelast zu reduzieren.

SQUIDs besitzen von Natur aus eine außerordentlich hohe Empfindlichkeit gegenüber Magnetfeldänderungen von ca. $1 \text{ fT}/\sqrt{\text{Hz}}$.²⁰ Daher ist eine Abschirmung des SQUIDs und dessen Ansteuerleitungen gegenüber elektromagnetischen Störquellen (bis auf Ausnahmen) obligatorisch. Solche Quellen sind u.a. das Stromnetz (50 Hz), Computer und insbesondere Radio- und Fernsehsender. Für die Abschirmung im Tieftemperatur-Bereich wurde für den SQUID-Chip ein supraleitender Zylinder und für die sonstigen Bauteile eine geschlossene Metallabschirmung benutzt. Die Materialwahl wird im folgenden Abschnitt näher erläutert.

¹⁹Typ: Powder Core 55145. Lieferant: Magnetics, Butler, PA, USA.

²⁰Dieser Wert gilt für ein typisches SQUID-Rauschen von $1 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ und eine kreisförmige SQUID-Schleife mit Durchmesser $50 \mu\text{m}$.

4.3 Aufbau des magnetischen Kalorimeters

4.3.1 Kupferträger

Den Aufbau des magnetischen Kalorimeters mit dessen einzelnen Komponenten zeigt Abb. 4.6. Das gesamte Kalorimeter ist auf einen stabilen Kupferträger aufgebaut.

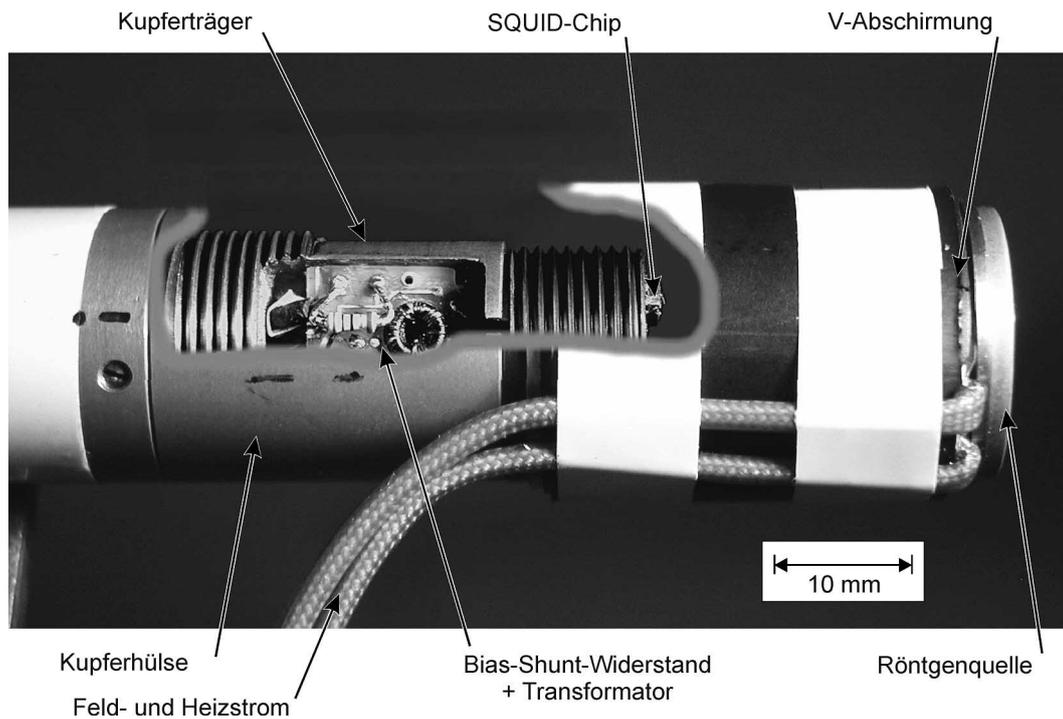


Abbildung 4.6: Schnittbild des Kupferträgers mit eingebetteten passiven Bauelementen, sowie der Röntgenquelle und Teilen der Abschirmung gegen elektromagnetische Störstrahlung.

Im Mittelteil dieses Kupferträgers ist beidseitig jeweils eine Nut eingefräst, die verschiedene passive Bauteile, wie den Transformator und den Bias-Shunt-Widerstand aufnehmen können. Dieser Teil wird durch eine Kupferhülse gegen elektromagnetische Störungen geschirmt. Auf der rechten Seite der Abb. 4.6 ist eine weitere Abschirmung aus Vanadium sichtbar, deren Funktion in Abschnitt 4.3.6 beschrieben wird.

An der Stirnseite des Kupferträgers (in der Mitte des Bildes) ist der SQUID-Chip mit Hilfe einer dünnen Klebstoffschicht (GE-7031) fixiert. Diese Stirnfläche ist in Abb. 4.7 dargestellt. Der SQUID-Chip befindet sich in einer Vertiefung, so dass die Oberflächen des SQUIDs und der umgebenden Kupferleiterbahnen (Bond-Pads) die gleiche Höhe besitzen. Das erleichtert die elektrische Kontaktierung des SQUIDs mit Aluminium-Bond-Drähten, die in der Abbildung als feine Linien erkennbar sind.

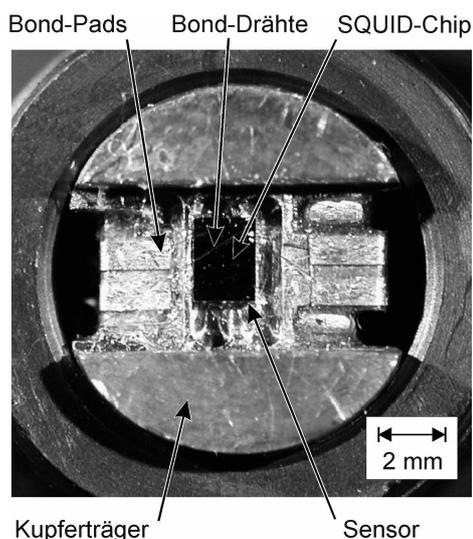


Abbildung 4.7:
Stirnfläche des Kupferträgers mit SQUID-Chip, Bonddrähten und -pads.

4.3.2 Sensor

Der Sensor ist aus dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Material hergestellt worden. Die nach dem Erschmelzen zunächst tropfenförmige Gestalt des Sensormaterials wurde durch Walzen in Folienform gebracht. Auf einem Kupferplättchen wird die gewalzte, $20(5) \mu\text{m}$ dünne Folie des AuEr-Materials mit Hilfe eines Cyanacrylat-Klebstoffes²¹ fixiert und anschließend mit einem Laser in der gewünschten Form ausgeschnitten.²² Eine elektronenmikroskopische Aufnahme des Sensors nach der Laser-Bearbeitung zeigt Abb. 4.8.

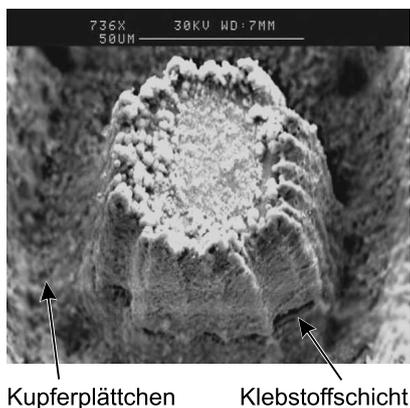


Abbildung 4.8:
Elektronenmikroskopische Aufnahme des Sensors direkt nach der Laser-Bearbeitung.

Deutlich erkennbar sind die Kanten des Sensor, deren charakteristische Form aus dem 'Schreiben' der Pixel des Laser-Scanners resultieren. Die dünne, dunkle Schicht am Boden des Sensors ist die Klebstoffschicht unterhalb welcher sich das Kupferplättchen befindet. Auf der Stirnfläche des bearbeiteten Sensors erkennt man

²¹'Krazy-Glue', das US-Pendant zum UHU-Sekundenkleber.

²²Mein besonderer Dank gilt an dieser Stelle P. Heyl, der mit Hilfe eines computergesteuerten Laser-Scanners die flache, zylindrische Form des Scheibchens von nur $50 \mu\text{m}$ Durchmesser aus der Folie herausarbeitete. [Hey00]

den Materialauswurf der während der Bearbeitung gebildet wird.

Im anschließenden Schritt konnte das noch fixierte Scheibchen durch sanftes Berühren mit einer feinen Nadel gelöst, mit einem Mikromanipulator aufgenommen und in der SQUID-Schleife positioniert werden. Eine zuvor aufgebraute dünne Silikonfettschicht fixierte den Sensor auf der Chip-Oberfläche. Diese Methode erweist sich als vorteilhaft, da die Verbindung bei Zimmertemperatur beliebig veränderbar ist und bei tiefen Temperaturen dennoch festen Halt gewährt.

Bei einigen Experimenten wurde zwischen Sensor und Absorber eine dünne Isolationsschicht (PE-Folie, $15\ \mu\text{m}$ dick) eingesetzt um die Thermalisierungszeit des Sensors mit dem Wärmebad gezielt zu verlängern.

Bedingt durch die geringen Abmessungen des Sensors und der Detektionsspule, muss beim Einbau des Sensors eine Genauigkeit von wenigen μm bezüglich der Positionierung eingehalten werden. Diese Genauigkeit ist notwendig, damit die, z.B. durch die Absorption eines Röntgenquants hervorgerufene Änderung des magnetischen Moments des Sensors $\delta m = V\delta M$ (mit dem Sensorvolumen V) eine möglichst große Änderung des magnetischen Flusses $\delta\Phi$ in der SQUID-Schleife bewirkt. Die Umsetzung der Änderung des magnetischen Moments δm in eine Flussänderung $\delta\Phi$ lässt sich schreiben als

$$\delta\Phi = \mu_0 \frac{G}{R} \delta m, \quad (4.1)$$

wobei R der Radius der SQUID-Schleife und G ein dimensionsloser Geometriefaktor ist. Betrachtet man ein einzelnes magnetisches Moment in der Ebene einer kreisförmigen SQUID-Schleife, so gilt $G = \frac{1}{2}$ für den Fall, dass sich das magnetische Moment exakt im Zentrum der Schleife befindet. Bei einer radialen Verschiebung zur Schleife hin steigt G rasch an und erreicht am Ort der Schleife eine Polstelle. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 4.9 als Ergebnis einer numerischen Berechnung dargestellt.

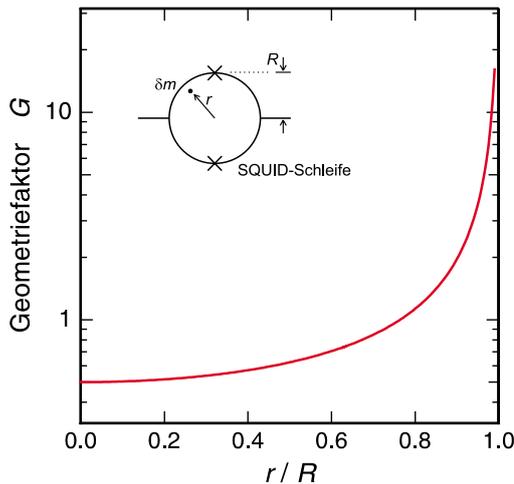


Abbildung 4.9:
Geometriefaktor G eines *einzelnen* magnetischen Momentes dessen Position von der Mitte einer SQUID-Schleife mit Radius R in deren Ebene um den Abstand r verschoben ist.

Auf gleiche Weise kann der Geometriefaktor für einen ausgedehnten Sensor, hier in Form einer dünnen Scheibe berechnet werden. Das Ergebnis ist in Abb. 4.10 als Funktion der lateralen Verschiebung für verschiedene Abstände zwischen Sensor und Chip-Oberfläche dargestellt. Der Abstand beträgt bei der direkten Montage ca.

$h = 2 \mu\text{m}$ und unter Verwendung der Isolationsschicht $h = 15 \mu\text{m}$. Deutlich erkennt

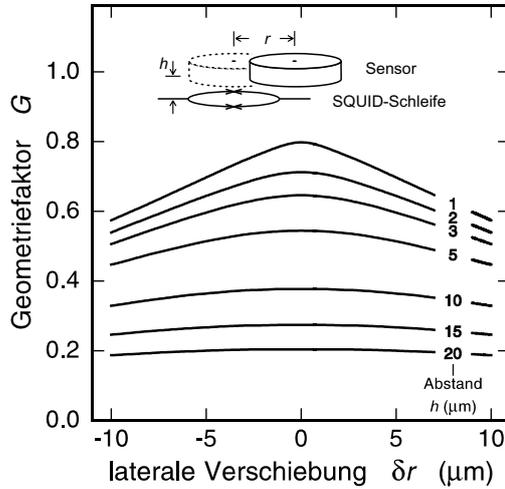


Abbildung 4.10:

Berechnung des Geometriefaktors G in Abhängigkeit vom Abstand h des Sensors von der Chip-Oberfläche und einer möglichen lateralen Verschiebung δr . Der Durchmesser des Sensors und der SQUID-Schleife betragen $50 \mu\text{m}$.

man, dass der Geometriefaktor durch das Einfügen der Isolationsschicht um ca. 60 % abnimmt. Eine weitere Reduktion kann aus einer geringfügigen Verschiebung in lateraler Richtung resultieren, deren Einfluss bei großen Abständen h jedoch deutlich reduziert ist. Bei einer Toleranzgrenze von -10 % des Maximalwertes beträgt daher die maximal zulässige laterale Verschiebung $\delta r = \pm 5 \mu\text{m}$ ohne und $\delta r = \pm 10 \mu\text{m}$ mit der Isolationsschicht.

4.3.3 Absorber

Ist das von der Strahlungsquelle ausgehende Raumwinkelement²³, welches die Fläche des Sensors abdeckt, vergleichsweise klein, so kann die Ereignisrate bei der Beobachtung einer intensitätsschwachen Quelle unakzeptabel gering sein. Eine Vergrößerung dieses Raumwinkelements durch eine einfache Vergrößerung des Sensorradius und der SQUID-Schleife R führt jedoch zu einer Verringerung des Höhe des Kalorimetersignals. Dieser Sachverhalt kann anhand von Gl. 4.1 abgelesen werden.

Abhilfe schafft in diesem Fall ein zusätzlicher Absorber für die Röntgenquanten, dessen Fläche größer als die des Sensors ist und auf diese Weise das Raumwinkelement und die Ereignisrate vergrößert. Der Sensor, dessen Geometrie nicht geändert werden muss, steht in thermischem Kontakt zum Absorber. Die dort absorbierte Energie eines Röntgenquants thermalisiert nun jedoch im Gesamtsystem aus Sensor und Absorber. Bedingt durch dessen Wärmekapazität erreicht nur ein Teil der absorbierten Energie den Sensor. Dieser Teil wird durch das Verhältnis der Wärmekapazitäten $\frac{C_{\text{Spin}}}{C_{\text{A}} + C_{\text{Elektr.}} + C_{\text{Spin}}}$ bestimmt, wobei $C_{\text{Elektr.}}$ die Wärmekapazität der Leitungselektronen bezeichnet.²⁴ Daraus folgt unmittelbar, dass man die Wärmekapazität des Absorbers im Vergleich zur Wärmekapazität des Systems der

²³Das Raumwinkelement Ω wird in *Steradian* (sr) angegeben. Z.B. $\Omega_{\text{Kugel}} = 4\pi \text{ sr}$.

²⁴Auch hier gilt aufgrund der geringen Betriebstemperatur: $C_{\text{Elektr.}} \gg C_{\text{Gitter}}$, weshalb die Wärmekapazität des Gitters in diesem Fall vernachlässigt werden darf.

magnetischen Momente möglichst klein halten möchte.

Für den hier beschriebenen Aufbau wurde in einem besonderen Fall ein Absorber aus Gold gewählt (vergl. Abschnitt 7.2.2). Das Edelmetall Gold besitzt gegenüber vielen anderen Materialien (Dielektrika, Supraleiter und Halbmetalle) eine vergleichsweise hohe molare Wärmekapazität und erscheint daher zunächst ungeeignet. Bei den typischerweise gewählten Betriebsparametern von $T \approx 30$ mK und $B \approx 3,0$ mT folgen für die relevanten molaren Wärmekapazitäten die Werte

$$C_{\text{Spin}} \approx 2,24 \cdot 10^{-4} \text{ J/mol K} \quad \text{und} \quad C_{\text{Elektr.}} \approx 0,22 \cdot 10^{-4} \text{ J/mol K} \quad (4.2)$$

(vergl. auch Abb. 3.12). Durch die große molare Wärmekapazität der magnetischen Momente ist der Beitrag eines optionalen Absorbers zur Gesamtwärmekapazität häufig nur klein, was ein besonderer Vorteil magnetischer Kalorimeter ist.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Absorber eingesetzt, dessen Größe $100 \times 100 \times 8 \mu\text{m}^3$ betrug. Der Anteil der Wärmekapazität dieses Absorbers an der Gesamtwärmekapazität von ca. $1,3 \cdot 10^{-12}$ J/K betrug damit nur 15 %. Gold wurde als Absorbermaterial gewählt, da zwischen den beiden nahezu identischen Materialien von Absorber und Sensor mit einer Ultraschall-Schweiß-Technik²⁵ eine thermisch starke und mechanisch robuste Verbindung hergestellt werden konnte. Ein schematisches Schnittbild ist in Abb. 4.11 a) dargestellt. In der Abbildung ist angedeutet,

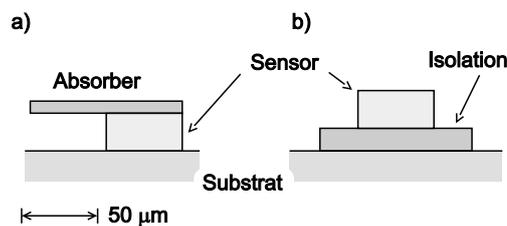


Abbildung 4.11:

Schematisches Schnittbild der zwei verwendeten Anordnungen von
a) dem Sensor/Absorber-System,
und
b) dem Sensor in Verbindung mit der PE-Isolationsfolie.

dass sich der zylindrische Sensor an einer Kante (genauer: Ecke) des rechteckigen Absorbers befindet, was eine Positionierung des Sensor-Absorber-Bauteils auf der Oberfläche des SQUID-Chip-Substrates erheblich vereinfacht.

Im Vergleich dazu ist in Bild b) die Anordnung des Sensors auf der Isolationsfolie dargestellt.

Quanteneffizienz des Absorbers

Neben der Vergrößerung der Fläche, die der Röntgenquelle exponiert ist, werden zusätzliche Absorber häufig mit dem Ziel eingesetzt, die gewünschte Quanteneffizienz des Detektors für die nachzuweisende Strahlung zu erreichen.

Das AuEr-Sensormaterial besitzt bereits einen hohen Massenabsorptionskoeffizienten μ_{Au} für niederenergetische Röntgenstrahlung, der zu fast 100 % vom photoelektrischen Beitrag bestimmt wird. Bei $E_\gamma = 6$ keV gilt $\mu_{\text{Au}} \approx 4,25 \cdot 10^2 \text{ cm}^2/\text{g}$.

²⁵Die Arbeiten wurden mit einem kommerziellen Wedge-Bond-Gerät durchgeführt, welches auch zur elektrischen Kontaktierung des SQUID-Chips eingesetzt wurde.

Mit der Dichte von Gold $\rho_{\text{Au}} = 19,32 \text{ g/cm}^3$ folgt die exponentielle Abfalllänge zu $\lambda \approx 1,2 \mu\text{m}$. Röntgenquanten der Energie $E_\gamma \lesssim 6 \text{ keV}$ werden daher sowohl vom $25 \mu\text{m}$ dicken AuEr-Sensor als auch vom $8 \mu\text{m}$ dicken Absorber mit einer Quanteneffizienz von nahezu 100 % absorbiert.

Der Massenabsorptionskoeffizient und damit die Quanteneffizienz des Absorbers bzw. Sensors ist jedoch stark von der Energie E_γ der Röntgenquanten abhängig. Die Quanteneffizienz ist in Abb. 4.12 für verschiedene Energien als Funktion der Dicken des AuEr-Sensors bzw. Goldabsorbers dargestellt.

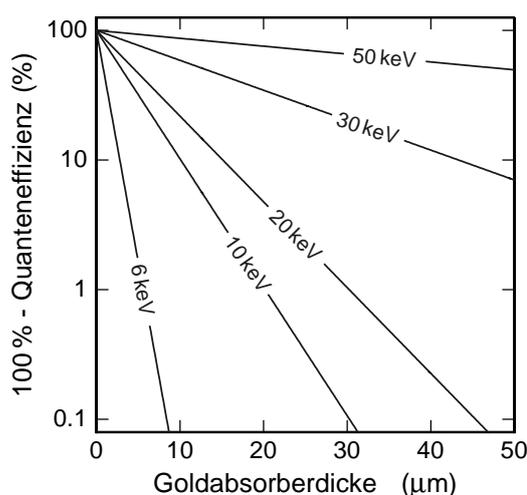


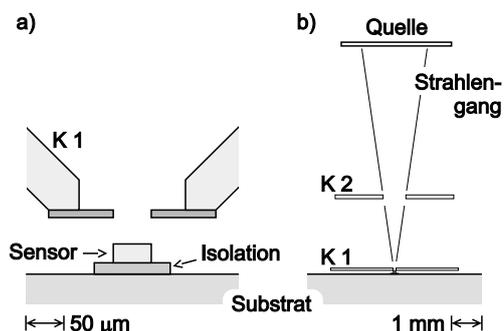
Abbildung 4.12:
Quanteneffizienz eines Goldabsorbers (oder auch AuEr-Sensors) als Funktion der Absorberdicke für verschiedene Röntgenenergien.

4.3.4 Kollimator

Aus umgekehrter Sicht besitzt jedes Nachweisgerät für Strahlung ein vom Sensor ausgehendes Raumwinkelement, innerhalb dessen die Quellen lokalisiert sein müssen, deren Strahlung nachgewiesen werden soll. Häufig wird dieses Raumwinkelement durch einen Kollimator derart reduziert, dass Strahlung zwar den sensitiven Bereich (in diesem Fall den Sensor oder Absorber) erreichen kann, jedoch nur wenige Absorptionereignisse in Bereichen des Gerätes stattfinden in denen sie dessen Funktion beeinträchtigen oder sogar zu Beschädigungen führen können.

Aus diesem Grund wurde der Strahlengang des in dieser Arbeit beschriebenen magnetischen Kalorimeters so eingeschränkt, dass nur ca. 10 % der absorbierten Photonen das Substrat des Chips treffen. Einen schematischen Schnitt durch den verwendeten Doppel-Kollimator zeigt Abb. 4.13.

Die Kenntnis des Raumwinkelements ist notwendig, da über dieses ein Zusammenhang zwischen der tatsächlich beobachteten Zählrate im Detektor und der Aktivität der Röntgenquelle besteht. Durch den ausgedehnten Sensor bzw. Absorber und die kreisförmigen Öffnungen in den einzelnen Kollimatoren führt die Berechnung des Raumwinkelements auf elliptische Integrale, die analytisch nicht lösbar sind. Aus diesem Grund wurde ein numerisches Verfahren entwickelt, welches im hier vorliegenden Fall axialer Symmetrie von Sensor oder Absorber und Kollimator einen Näherungswert für das Raumwinkelement berechnet.

**Abbildung 4.13:**

Schematische Abbildung der Anordnung von Sensor, Kollimator und Röntgenquelle.

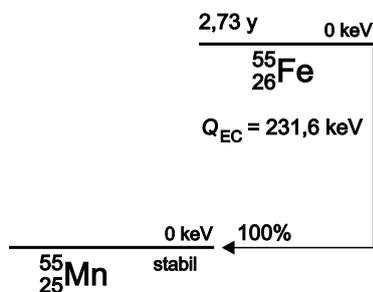
- a) Sensor mit dem nahen ersten Kollimator (K1),
- b) Gesamtanordnung mit zweitem Kollimator (K2) und Röntgenquelle,

Die kreisförmigen Öffnungen in den zur Kollimierung benutzten $25\ \mu\text{m}$ dünnen Goldfolien wurden mit einer spitzen Nadel mit einer Genauigkeit von ca. 20% bezüglich des Radius 'gebohrt'. Die Positionierung der Kollimatoren erfolgte unter einem Mikroskop. Dennoch war die erreichte laterale Genauigkeit bedingt durch Beugungseffekte auf ca. $10\ \mu\text{m}$ reduziert. Davon unabhängig ist die Beugung der Röntgenquanten im Strahlengang aufgrund der geringen Wellenlänge vernachlässigbar.

Die Kollimierung des Strahlenganges ist für das hier beschriebene hochauflösende Kalorimeter von besonderer Bedeutung, was kurz erläutert werden soll. Die Energie der Röntgenquanten, die im Substrat des SQUID-Chips absorbiert werden, kann über die thermische Ankopplung zu einem Teil auch in den Sensor gelangen, bevor sie an das Bad abgeführt wird. Dieser Prozess ist im Ruhesignal des Kalorimeters sichtbar und kann bei unzureichender Kollimierung die Auflösung des Kalorimeters drastisch reduzieren.

4.3.5 Test-Röntgenquelle

Die zu Testzwecken benutzte Quelle für Röntgenquanten der Energie $E_\gamma \approx 6\ \text{keV}$ ist ein Eisenpräparat ^{55}Fe , das in Form einer eingekapselten Flächenquelle mit einer nominellen Aktivität von 1 mCi vorlag²⁶. Ein auf die wesentlichen Elemente reduziertes Zerfallsschema des Übergangs von ^{55}Fe in ^{55}Mn ist in Abb. 4.14 dargestellt.

**Abbildung 4.14:**

Auf die in dieser Arbeit wesentlichen Elemente reduziertes Zerfallsschema des Übergangs von $^{55}_{26}\text{Fe}$ in $^{55}_{25}\text{Mn}$. (Nach [Fir96]).

²⁶Lieferant: Amersham, AEA Technology, QSA GmbH, Braunschweig.

Das Isotop ^{55}Fe zerfällt mit einer Halbwertszeit von 2,73 Jahren durch einen K -Elektronen-Einfang (EC) in das Isotop ^{55}Mn . Der Q -Wert für diesen Zerfall, bei dem ein Proton des Eisenkernes zusammen mit dem Elektron in ein Neutron und ein Elektronneutrino übergeht, beträgt $Q_{\text{EC}} = 231,6 \text{ keV}$. In nahezu 100 % der Zerfälle wird diese Energie vom Neutrino getragen.²⁷

Das durch den Elektronen-Einfang erzeugte Loch in der K -Schale der Elektronenhülle des Mn-Ions wird durch Elektronen aus energetisch höher liegenden Niveaus aufgefüllt, wobei die charakteristische Röntgenstrahlung von Mangan emittiert wird. Die entsprechenden Energien der K_{α} - und K_{β} -Linien sind in der folgenden Tabelle zusammen mit der relativen Intensität zusammengefasst.

Bezeichnung	Energie (keV)	relative Intensität
Mn- $K_{\alpha 3}$	5,770	$2,4 \cdot 10^{-7}$
Mn- $K_{\alpha 2}$	5,888	0,299
Mn- $K_{\alpha 1}$	5,899	0,595
Mn- $K_{\beta 3}$	6,490	0,036
Mn- $K_{\beta 1}$	6,490	0,070
Mn- $K_{\beta 5}$	6,536	$3,1 \cdot 10^{-5}$
Mn- $K_{\beta 4}$	6,539	$3,0 \cdot 10^{-9}$

Tabelle 4.1: Energien der charakteristischen Röntgenstrahlung von Mangan [Fir96].

Die Quelle befand sich im Abstand von 3 mm vom Sensor entfernt, und nur ein Teil der aktiven Fläche lag innerhalb des oben beschriebenen Raumwinkelements (vergl. Abb. 4.13 b)). Es kann gezeigt werden, dass die Ereignisrate in diesem Fall *nicht* vom Abstand der Quelle zum Sensor, sondern ausschließlich von der Geometrie des Sensors und des Kollimators abhängig ist. Deren Geometrie war im Testbetrieb des Kalorimeters so gewählt, dass die Ereignisraten zwischen $0,5 \text{ s}^{-1}$ und 5 s^{-1} betragen.

4.3.6 Äußeres Magnetfeld

In Abschnitt 3.1 wurde gezeigt, dass die Messung der temperaturabhängigen Magnetisierung eines paramagnetischen Sensormaterials die Grundlage das grundlegende Messprinzip magnetischer Kalorimeter darstellt. Für den Betrieb wird ein zeitlich konstantes Magnetfeld benötigt, dessen Erzeugung im Folgenden beschrieben werden soll.

Das Magnetfeld wird zunächst durch eine supraleitende Feldspule (Niob-Titan-Draht, $T_c = 9,7 \text{ K}$) erzeugt, die in mehreren Lagen auf einen supraleitenden Vanadium-Hohlzylinder ($T_c = 5,38 \text{ K}$) gewickelt wurde (vergl. Abb. 4.6). Die zeitliche Konstanz des Magnetfeldes wird durch das 'Einfrieren' des magnetischen Flusses im Querschnitt des Hohlzylinders erreicht. Dazu wird der Vanadium-Zylinder über die Sprungtemperatur aufgeheizt. Im normalleitenden Zustand wird der Zylinder von dem durch die Feldspule erzeugten magnetischen Fluss durchsetzt. Nach dem

²⁷Nur in einem verschwindend geringen Teil von $1,28 \cdot 10^{-7} \%$ findet eine Kernanregung vom ^{55}Mn und eine darauf folgende Emission eines γ -Quants der Energie $125,95 \text{ keV}$.

Unterschreiten der Sprungtemperatur ist der Fluss innerhalb des Querschnittes des Zylinders zeitlich konstant, und der Strom zur Erzeugung des Magnetfeldes durch die Feldspule kann abgeschaltet werden. Auch nach dem Abschalten entspricht die magnetische Flussdichte am Ort des Sensors mit sehr guter Genauigkeit der Flussdichte, welche von der Feldspule zuvor erzeugt wurde.

Die Kalibrierung des Magnetfeldes am Ort des Sensors wurde vorgenommen, während die Temperatur des Vanadium-Zylinders oberhalb der Sprungtemperatur gehalten wurde. Die Kalibrierung folgt aus der Messung der Flussänderung innerhalb der SQUID-Schleife relativ zu der Änderung des zum Erzeugen des Magnetfeld benötigten Stromes.

Auf gleiche Weise konnte man sich von der Effektivität der abschirmenden Wirkung des *supraleitenden* Vanadium-Zylinders überzeugen. Wurde mit Hilfe der Feldspule das äußere Magnetfeld um $\Delta B_{\text{Spule}} = 3,0 \text{ mT}$ geändert, so wurde eine Flussänderung von $\Delta \Phi < 0,5 \Phi_0$ innerhalb der SQUID-Schleife beobachtet. Diese Flussänderung entspricht einer Magnetfeldänderung von $\Delta B_{\text{SQUID}} < 0,5 \mu\text{T}$. Der Abschwächungsfaktor beträgt daher ca. 1:6000.

Auf diese Weise kann am Sensor das notwendige, zeitlich konstante Magnetfeld bekannter Flussdichte am Ort des Sensors erzeugt werden. Zu beachten ist jedoch, dass auch das SQUID und insbesondere die beiden Josephson-Kontakte dem Magnetfeld ausgesetzt waren, was gewisse Einschränkungen bezüglich der Funktion des SQUIDs bewirkt (vergl. Abschnitt 4.2.3).

4.4 Regelung der Temperatur

Das magnetische Kalorimeter selbst ist im Grunde ein hochempfindliches Thermometer, mit dem sich Änderungen der Sensortemperatur von weniger als $1 \mu\text{K}$ nachweisen lassen. Ein 'Rauschen' der Arbeitstemperatur ist daher direkt als Rauschen des Kalorimetersignals sichtbar. Da die Höhe des Kalorimetersignals zusätzlich eine starke Temperaturabhängigkeit aufweist, muss Sorge getragen werden, dass die Arbeitstemperatur des Kalorimeters von typ. 30 mK auf einen rms-Wert²⁸ von ca. $5 \mu\text{K}$ genau konstant gehalten wird. Dazu wird ein Regelungsmechanismus benötigt, der aus einem empfindlichen, schnellen Thermometer (wie dem Kalorimeter selbst) und einem elektronischen Regler für einen rauscharmen Heizer besteht. Ein solcher Aufbau ist als Prinzipschaltbild in Abb. 4.15 dargestellt.

Er besteht aus einer zweistufigen Regelung. Die erste Stufe dient als Grobregelung der Mischkammertemperatur T_{MK} . Sie besteht aus einem Kohlewiderstandsthermometer, welches von einer Widerstandsmessbrücke ausgelesen wird (vergl. Abschnitt 4.1). Die Temperaturmesswerte werden in digitaler Form von einem computergesteuerten PID-Regler²⁹ zugeführt. Dessen Ausgang ist mit einem Heizer an der Mischkammer verbunden [Wei95]. Die erreichte Stabilität der Mischkammertemperatur beträgt ca. $\Delta T_{\text{MK}} = 50 \mu\text{K}$ (rms-Wert bei $T \approx 25 \text{ mK}$).

Um die benötigte Temperaturstabilität für den Betrieb eines hochauflösenden

²⁸rms = root mean square <engl.> (Wurzel des quadratischen Mittelwertes).

²⁹PID = Proportional-Integral-Differential.

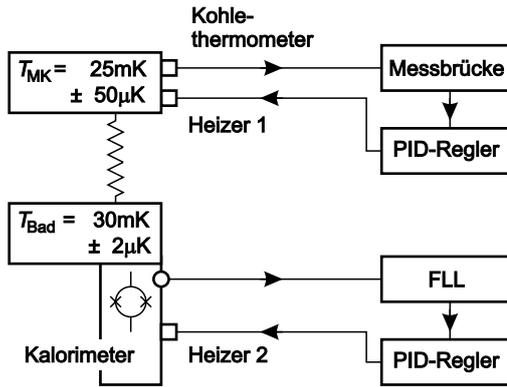


Abbildung 4.15:

Schematische Abbildung des zwei-stufigen Temperaturreglers. Die Mischkammer (MK) und das entkoppelte Wärmebad (Bad) des Kalorimeters werden separat auf verschiedenen Temperaturen stabilisiert.

magnetischen Kalorimeters zu erreichen, wurde das Kalorimeter mit einem eigenen Wärmebad in Form einer massiven Kupferplatte und dem Kupferträger (vergl. Abschnitt 4.3.1) versehen, dessen Gesamtwärmekapazität $C_{\text{Bad}} \geq 7 \cdot 10^{-5} \text{ J/K}$ ist³⁰. Wie in der Abbildung zu erkennen ist, besteht nur eine schwache thermische Kopplung zwischen diesem Wärmebad und der Mischkammer, wodurch die höheren Frequenzanteile der Schwankung der Mischkammertemperatur bereits unterdrückt werden.

Die zweite Stufe der Regelung nutzt das Ausgangssignal des Kalorimeters selbst. Bei der gewünschten Arbeitstemperatur, die zunächst durch die Mischkammertemperatur gesetzt wird, wird die Ausgangsspannung der Ausleseelektronik (FLL) durch einen Offset zu null verschoben. Diese Ausgangsspannung wird mit dem Eingang eines analogen, zweiten PID-Reglers verbunden. Sein Ausgang ist mit einem zweiten Heizer verbunden, der sich auf dem Kupferträger befindet. Auf diese Weise kann der zweite Regler die Arbeitstemperatur sehr genau konstant halten. Die Mischkammertemperatur T_{MK} wird nach dem Schließen des zweiten Reglerkreises um ca. 5 mK abgesenkt, so dass der zweite Regler die erforderliche Heizleistung variieren kann. Die erreichte Resttemperaturschwankung der zweiten Stufe erreicht einen rms-Wert von weniger als $\Delta T_{\text{Bad}} = 2 \mu\text{K}$ (bei $T_{\text{Bad}} \approx 30 \text{ mK}$ und $T_{\text{MK}} \approx 25 \text{ mK}$).

Durch die direkte Ansteuerung des Reglers mit dem Signal des Kalorimeters wird außerdem der Rückkoppelstrom des SQUID-Chips (zwischen zwei Ereignissen) konstant gehalten. Auf diese Weise konnte sichergestellt werden, dass die in Abschnitt 4.2.2 beschriebene Dissipation von elektrischer Leistung durch den Rückkoppelstrom auf ein Minimum reduziert und daher im Folgenden vernachlässigt werden kann. Eine Drift der Arbeitstemperatur des Kalorimeters von mehr als $\Delta T_{\text{Bad}} \approx 2 \mu\text{K}$ ist daher ausgeschlossen.

Zu beachten ist allerdings, dass der zweite PID-Regler die Absorption von einzelnen Röntgenquanten als 'Störung' der Arbeitstemperatur wahrnimmt. Er reagiert auf diese Störung mit einer kurzzeitigen Verringerung der Heizleistung. Die Rückwirkung auf das Kalorimetersignal ist jedoch sehr gering, da die Bandbreite des zweiten Reglerkreises auf ca. 0,2 Hz limitiert ist.

³⁰Dieser Wert folgt aus einer Abschätzung durch das Volumen von ca. 10 cm^3 und dem in T linearen Beitrag der Leitungselektronen zur Gesamtwärmekapazität [Ash76].

4.5 Signalverarbeitung im Kalorimeterbetrieb

Nachdem der elektronische und mechanische Aufbau des magnetischen Kalorimeters in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben wurde, wenden wir uns nun der Signalverarbeitung zu. Sie ist darauf abgestimmt, aus dem Kalorimetersignal die Energie des absorbierten Röntgenquants mit möglichst hoher Auflösung zu bestimmen. Dazu erweist es sich als zweckmäßig, Methoden der digitalen Signalverarbeitung zur Hilfe zu nehmen.³¹

Das analoge Signal der kommerziellen SQUID-Ausleseelektronik wird zunächst mit analogen Methoden aufbereitet bzw. gefiltert, was kurz beschrieben werden soll.

4.5.1 Analoge Signalaufbereitung

Die analoge Signalaufbereitung besteht aus einer Reihe von Filtern, die unterschiedliche Funktionen erfüllen. Der in Abb. 4.16 gezeigte, sogenannte Eingangsfiler besteht aus zwei in Reihe geschalteten Butterworth-Tiefpassfiltern 4. Ordnung mit einer Grenzfrequenz von $f_{g, \text{Ein}} = 80 \text{ kHz}$ und einer Flankensteilheit von über 16 dB/okt. Er wird als Anti-Aliasing-Filter benutzt, um das Auftreten von Differenzfrequenzen

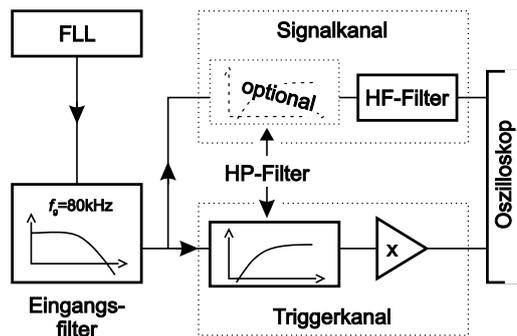


Abbildung 4.16:

Blockschaltbild der Schaltung für die Signalaufbereitung nach dem Ausgang der SQUID-Ausleseelektronik (FLL).

im digitalisierten Signal zu unterdrücken.^[Opp89] Nach diesem Filter wird das Signal in den Signal- und den Triggerkanal aufgeteilt. Der Signalkanal kann zusätzlich durch einen optionalen Hochpassfilter geleitet werden, um mögliche niederfrequente Störquellen zu unterdrücken. Direkt vor dem Signaleingang des digitalen Oszilloskops ist eine Breitband-HF-Drossel geschaltet, deren Grenzfrequenz bei einigen MHz liegt. Sie unterstützt die Funktion des Eingangsfilters im Radiofrequenzbereich.

Der Triggerkanal wird üblicherweise durch einen flankensteilen Hochpassfilter hoher Grenzfrequenz ($f_{g, \text{Trig}} = 10 \text{ kHz}$, 12 dB/okt) und einen anschließenden rauscharmen Verstärker³² geleitet. Die Funktion ist hier auf die Unterdrückung von *niederfrequentem* Rauschen und Störungen beschränkt. Das ist von besonderer Wichtigkeit, da im Idealfall die Zeitdifferenz zwischen dem Zeitpunkt der Absorption des Röntgenquants und des Auslösens der Triggerschaltung des Oszilloskops *konstant*

³¹Eine umfassende Beschreibung der Methoden der digitalen Signalverarbeitung ist beispielsweise in der Buchveröffentlichung von Oppenheim zu finden.^[Opp89]

³²Hersteller: Stanford Research, Sunnyvale, CA, USA.

bleibt. Da der Trigger bei Über- bzw. Unterschreiten einer Triggerschwelle ausgelöst wird, bewirkt jegliches Rauschen eine Veränderung dieser Zeitdifferenz (sogenannter Trigger-Jitter³³), wodurch die Information über den genauen Absorptionszeitpunkt verloren geht. Dieser Sachverhalt kann sich negativ auf die Energieauflösung des Kalorimeters auswirken.

Beide, Signal- und Triggerkanal werden dem digitalen Oszilloskop zugeführt, welches die im folgenden Abschnitt beschriebene Signalaufzeichnung durchführt.

4.5.2 Digitale Signalaufzeichnung

Die digitale Signalaufzeichnung übernimmt eine Oszilloskop-Computersteckkarte³⁴. Sie besitzt zwei unabhängige Kanäle, die synchron mit Sampling-Raten bis 50 MHz bei 12 bit Genauigkeit digitalisiert werden können. Die typische, bei der Datenaufzeichnung gewählte Sampling-Rate lag bei 200 kHz, weshalb die durch das Sampling-Theorem gestellten Anforderungen an die Bandbreite des Signals erfüllt waren. [Opp89] Die Steckkarte ermöglicht die Aufzeichnung des im folgenden *Puls* genannten Zeitverlaufs des Kalorimetersignals sowohl vor als auch nach dem Triggerzeitpunkt.

Zusammen mit einem speziell entwickelten Ansteuerprogramm bildet sie das Instrument 'DAQfast'³⁵, welches im Vergleich zu einem konventionellen Oszilloskop über einige Besonderheiten verfügt. Zu diesen gehören u.a. die sogenannten Holdoff-Funktion, Online-Auswertung und die χ^2 -Unterdrückung.

Holdoff-Funktion³⁶: Die Funktion ermöglicht die sofortige Verwerfung von Pulsen, deren zeitlicher Abstand zum vorhergehenden Puls kleiner als eine spezifizierte Zeit ist. Auf diese Weise kann weitgehend sichergestellt werden, dass der Sensor vor jedem aufgezeichneten Puls die benötigte Arbeitstemperatur besaß (vergl. Abschnitt 4.4).

Online-Auswertung³⁷: Diese Eigenschaft erlaubt eine *vorläufige* Auswertung der Höhe der einzelnen Pulse bereits während der Datenaufzeichnung. Durch die zusätzliche Analyse des Kalorimeter-Ruhesignals kann die unter den vorherrschenden Bedingungen maximale instrumentelle Auflösung bestimmt werden. Dadurch wird ein erster Eindruck bezüglich der Qualität des Datensatzes gewonnen. Der Algorithmus der Signalauswertung sowie die benötigten Begriffe werden im folgenden Abschnitt beschrieben.

χ^2 -Unterdrückung: Diese Funktion erlaubt die Verwerfung von solchen Pulsen, deren Qualität, bedingt durch die Überlagerung mit Störungen, reduziert ist. Umgekehrt lassen sich mit Hilfe dieser Funktion bestimmte, seltene Pulsformen auswählen, was wiederum im Bereich der Diagnostik von Bedeutung ist.

³³Jitter <engl.> (Zittern).

³⁴CompuScope SAC8012A/PCI; Gage, Montreal, Canada.

³⁵DAQ = Digital Data Acquisition <engl.> (Digitale Aufzeichnung von analogen Signalen).

³⁶Hold off <engl.> (sich zurückhalten/fernhalten).

³⁷Online <engl.> (Hier: Während der Datenaufzeichnung stattfindend).

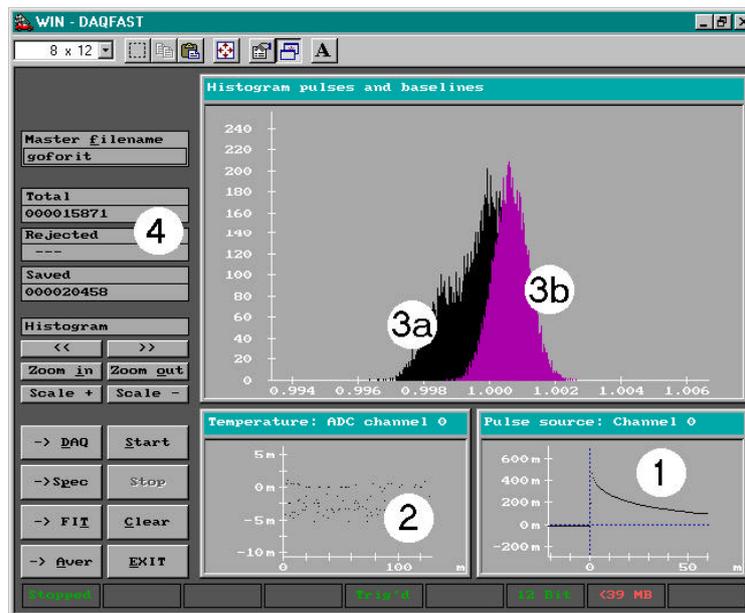


Abbildung 4.17: Momentaufnahme des DAQfast Datenaufnahme-Programms.
Die gekennzeichneten Bereiche ('1' bis '4') werden im Text erläutert.

Zur Bestimmung eines hochauflösenden Energiespektrums einer Röntgenquelle werden mit DAQfast eine große Anzahl von Pulsen (typ. mehrere 10000) jeweils in einem ausgewählten Zeitfenster aufgezeichnet und vollständig auf der Computerfestplatte gespeichert. Eine Momentaufnahme des Bildschirms während der Datenaufzeichnung ist in Abb. 4.17 dargestellt. Die einzelnen Bereiche veranschaulichen ① den zuletzt getriggerten Puls, ② den zeitlichen Verlauf der Abweichung der Arbeitstemperatur³⁸, ③a) und ③b) das Ergebnis der Online-Auswertung in Bezug auf das tatsächliche Energiespektrum der Quelle respektive die Bestimmung des Rauschbeitrages in Form einer Höhenverteilung der aufgezeichneten Pulse und ④ den Status, wie oft das Oszilloskop getriggert wurde, wieviele Pulse verworfen bzw. tatsächlich aufgezeichnet wurden.

Auf diese Weise bekommt man bereits während der Datenaufnahme eine umfassende Übersicht über die Qualität des Datensatzes, wodurch Fehleinstellungen oder der Einfluss von Störungen umgehend erkannt und ein möglicherweise unbrauchbarer Datensatz frühzeitig verworfen werden kann. Die endgültige Auswertung eines Datensatzes vollzieht sich in mehreren Schritten, die im folgenden Abschnitt beschrieben werden sollen.

4.5.3 Signalauswertung

Unter der Annahme, dass die Röntgenquelle monochromatisch ist und den Pulsen keinerlei Störungen überlagert sind, sollten alle Pulse exakt dieselbe Pulsform be-

³⁸Die Ordinate ist in Einheiten von mV angegeben. In diesem Fall entspricht $1 \text{ mV} \cong 1 \mu\text{K}$.

sitzen, die als *wahre* Pulsform bezeichnet werden soll. Sie ist von einer Vielzahl von Parametern, wie z.B. der Temperatur, dem Magnetfeld und den Einstellungen der Elektronik abhängig. Die wahre Pulsform ist jedoch i.Allg. unbekannt, da den einzelnen Pulsen Rauschen und Störungen überlagert sind. Da diese Überlagerungen jedoch inkohärent mit der Absorption des Röntgenquants sind, folgt aus der Mittelung einer Vielzahl von Pulsen gleichen Ursprungs³⁹ eine Näherung für die wahre Pulsform, die im Folgenden als *Musterpuls* bezeichnet werden soll.

Methode der Pulshöhenanpassung

Sowohl der Musterpuls, als auch jeder einzelne aufgezeichnete Puls liegen in digitaler Form vor. Die Samples r_i sollen in diesem Fall die Samples des Musterpulses und die Samples s_i die eines einzelnen Pulses bezeichnen. Sowohl ein Musterpuls, als auch ein verrauschter Einzelpuls sind in Abb. 4.18 abgebildet. Anhand dieser Abbildung soll die Vorgehensweise der Höhenanpassung erläutert werden. Die Höhenanpassung

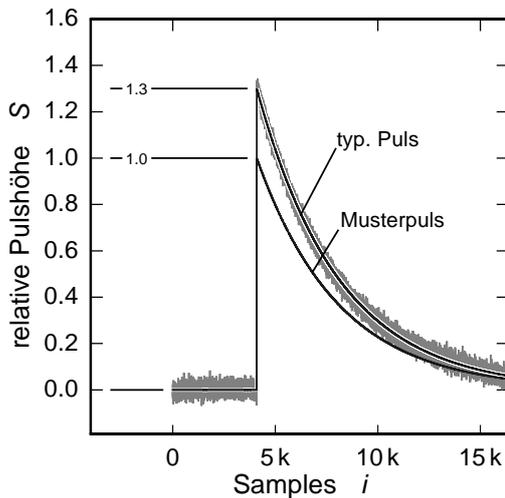


Abbildung 4.18:
Bestimmung der Signalhöhe eines typischen Pulses durch eine Höhenanpassung des Musterpulses.

wird so durchgeführt, dass die Werte der Samples des Musterpulses r_i mit einem Faktor S , der relativen Pulshöhe skaliert und um einen Offset S_0 verschoben werden, so dass die beste Übereinstimmung mit den Samples des Einzelpulses erreicht wird. Das Maß dieser Übereinstimmung wird durch das mittlere Abweichungsquadrat, die Größe χ^2 ausgedrückt:

$$\chi^2 = \frac{1}{i} \sum_i ((S r_i + S_0) - s_i)^2. \quad (4.3)$$

Für die beste Übereinstimmung wird die Größe χ^2 minimal. Dadurch sind mit diesem Kriterium sowohl S als auch S_0 implizit definiert. Für die in Abb. 4.18 dargestellten Pulse wird die beste Übereinstimmung für $S = 1,3$ und $S_0 = 0$ erreicht. Man kann

³⁹Gleicher Ursprung bedeutet gleicher Röntgenübergang, z.B. K_α , daher quasi identische Photonenenergie E_γ .

zeigen, dass aus der impliziten Definition für die relative Pulshöhe

$$S = \frac{\sum_i r_i s_i - \sum_i r_i \sum_i s_i}{\sum_i s_i s_i - (\sum_i s_i)^2} \quad (4.4)$$

gilt. Die absolute Pulshöhe bzw. die Energie des absorbierten Röntgenquants E_γ wird danach wie üblich mit Hilfe einer Kalibrierung bestimmt. Dazu können die bekannten Röntgenenergien der Testquelle verwendet werden (vergl. Abschnitt 4.3.5).

Einfluss von Rauschen

Die ermittelte Pulshöhe liegt umso näher an der wahren Pulshöhe, je genauer der zuvor bestimmte Musterpuls die wahre Pulsform beschreibt und je geringer der anzupassende Puls von Rauschen und Störungen überlagert ist. Wir wollen nun den Einfluss von Störungen untersuchen und werden feststellen, dass die Anpassung als effektive Bandpass-Rauschunterdrückung arbeitet.

Dazu nehmen wir an, der aufgezeichnete Puls (Samples s_i) besitze die exakte Form des Musterpulses (r_i); er sei jedoch von einer diskreten Störung

$$U_s = A_s \cos(\omega_s t + \phi_k) \quad (4.5)$$

überlagert. Dadurch weicht die ermittelte relative Pulshöhe S i.Allg. vom Wert 1 ab. Legen wir die in Abb. 4.19 a) angegebene typische Pulsform zugrunde, so folgt für die Abweichung $\Delta S = S - 1$ eine Abhängigkeit von der Phase ϕ_k , die in Teilbild b) dargestellt ist. Die Amplitude der sinusförmigen Kurve ist abhängig von der Frequenz der Störung und ist proportional zu deren Amplitude.

Alle Phasen ϕ_k sind statistisch gleichverteilt, daher folgt die in Teilbild c) dargestellte Wahrscheinlichkeitsverteilung (durchgezogene Kurve). Sie gibt die spätere Linienform in einem Energiespektrum an, die von einer monochromatischen Röntgenquelle unter alleinigem Einfluss der diskreten Störung U_s beobachtet werden würde.

Um die Linienbreite im Energiespektrum für eine Überlagerung mehrerer Störfrequenzen anzugeben, erweist es sich als zweckmäßig, die Linienform in Abb. 4.19 c) durch eine Gauß-Verteilung gleicher Standardabweichung zu ersetzen. Diese Gauß-Verteilung ist exemplarisch in Teilbild c) als gestrichelt eingezeichnete Kurve dargestellt. Die Breite von gaußförmigen Linienformen wird in der Spektroskopie häufig in Einheiten der FWHM-Breite⁴⁰ angegeben.

Bei einer Überlagerung mehrere Störfrequenzen können die Standardabweichungen der als gaußförmig angenommenen Einzelbeiträge zur Linienbreite σ_i quadratisch summiert werden. D.h., dass für die Gesamtbreite σ_{ges} gilt

$$\sigma_{\text{ges}}^2 = \sum_i \sigma_i^2. \quad (4.6)$$

⁴⁰FWHM = Full width at half maximum <engl.> (Breite auf halber Höhe). Für Gauß-Verteilungen gilt die Beziehung zwischen Standardabweichung σ und der FWHM-Breite: FWHM = $2\sqrt{2\ln(2)}\sigma$.

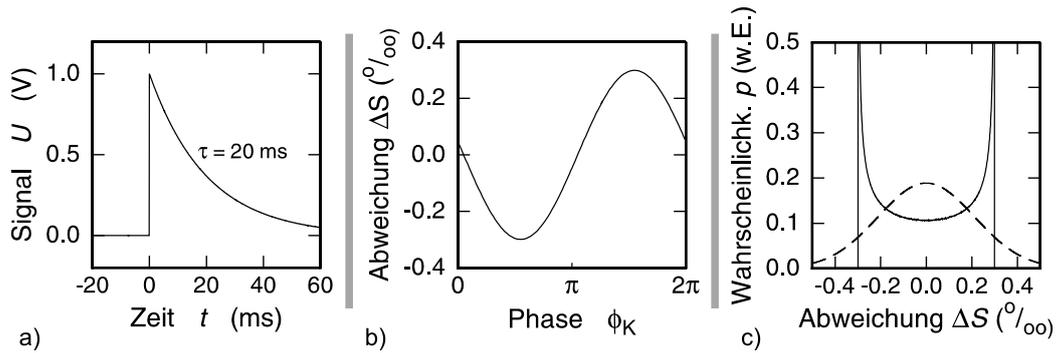


Abbildung 4.19:

- a) Typische, mit Zeitkonstante $\tau = 20$ ms exponentiell abklingende Pulsform,
- b) Abweichung der rel. Pulshöhe i.Allg. von der Phase der Störung (50 Hz, 2 mV_{pp}),
- c) Wahrscheinlichkeitsverteilung bzw. Linienform durch Störung (s. Text). Zum Vergleich ist eine gaußförmige Verteilung gleicher Standardabweichung eingezeichnet (gestrichelt dargestellte Kurve).

Die Größe der Einzelbeiträge ist proportional zur Amplitude der jeweiligen Störung und zusätzlich in charakteristischer Weise von der Frequenz abhängig. Diese Frequenzabhängigkeit ist in Abb. 4.20 für zwei verschiedene Varianten der Pulshöhenbestimmung dargestellt. Diese Varianten unterscheiden sich darin, ob die Offsetkorrektur S_0 (vergl. Gl. 4.3) mit $S_0 = 0$ als konstant angenommen oder als freier Parameter behandelt wird, welches der Normalfall ist. Die FWHM-Breite σ_S der

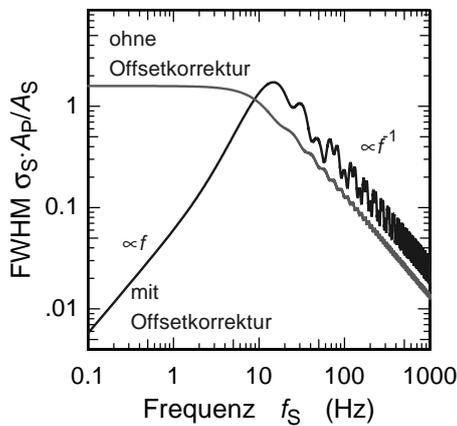


Abbildung 4.20:

FWHM der Linie im Energiespektrum als Funktion der Frequenz der Störung f_S für die Varianten der Pulshöhenbestimmung mit und ohne Offsetkorrektur.

Ein Ablesebeispiel ist im Text gegeben.

Linie im Energiespektrum ist in dieser Abbildung als Funktion der Frequenz der Störung f_S in reduzierten Einheiten dargestellt. Um die tatsächliche FWHM-Breite zu ermitteln muss der abgelesene Wert mit der Amplitude der Störung A_S (in Einheiten von V_{pp}) multipliziert und durch die absolute Signalhöhe A_P dividiert werden (beispielsweise $A_P = 1 \text{ V}$ für den Puls in Abb. 4.19 a)). In einem konkreten Beispiel würde eine Störung der Frequenz $F_g = 50 \text{ Hz}$ und der Amplitude von $A_S = 2 \text{ mV}_{\text{pp}}$ eine FWHM-Breite der Linienform von $0,5 \text{ ‰}$ ergeben.

Deutlich erkennt man für beide dargestellten Varianten, dass der Einfluss der

höherfrequenten Störungen proportional zu f^{-1} abnimmt. Wenn die Offsetkorrektur benutzt wird, findet man außerdem eine Abnahme des Einflusses proportional zu f zu tiefen Frequenzen hin. In diesem Fall, dem Normalfall, ist die oben beschriebene Pulshöhenanpassung mit einer bandpassartigen Rauschunterdrückung vergleichbar. Das Maximum dieses 'Bandpasses' liegt bei *etwa* der Frequenz, die der reziproken Länge des Zeitfensters (für den Puls in Abb. 4.19 a): $\Delta t \approx 80 \text{ ms} \rightarrow 12,5 \text{ Hz}$) entspricht.

Die scheinbar statistische Abfolge der Minima und Maxima der Kurven wiederholt sich periodisch mit der Frequenz (log. Achse!) und ist von der Pulsform, der Wahl des Zeitfensters und des Triggerzeitpunktes abhängig. Die Empfindlichkeit der Pulshöhenanpassung auf hochfrequentes Rauschen ist um ca. einen Faktor zwei reduziert, wenn *keine* Offsetkorrektur benutzt wird.

Rauschen des Ruhesignals und Linienbreite

Die genaue Bestimmung des Rauschens des Kalorimeter-Ruhesignals ist von besonderer Wichtigkeit, um Vorhersagen über die zu erwartende Linienbreite im Energiespektrum und daher die Energieauflösung des Kalorimeters treffen zu können. Für diese Rauschmessung zeichnet man eine Vielzahl von Zeitabschnitten des Ruhesignals (typischerweise mehrere 100, jeweils mehrere Sekunden lang) des Kalorimeter-Ruhesignals auf. Das ist in der Regel nur möglich, wenn das Kalorimeter mit einer sehr kleinen Absorptionsrate oder im Idealfall *ohne* die Testquelle betrieben wird. Die aufgezeichneten Ruhesignale werden einer diskreten Fourier-Transformation unterzogen (FFT-Algorithmus siehe [NuR92]) und ergeben nach der Mittelung eine Näherung für die spektrale Dichte des Rauschens.⁴¹

Ist das Frequenzspektrum des Rauschens bekannt, so kann mit Hilfe eines speziell entwickelten Computerprogramms 'DAQfast-Synthesizer' das Kalorimetersignal in den verschiedensten Einstellungen (Pulsformen, Zeitfenster, Triggerzeitpunkt und Filtereinstellungen) nachgebildet und mit numerisch synthetisiertem Rauschen (weißes und rosa Rauschen⁴²) und verschiedenen anderen Störungen überlagert werden. Eine nachfolgende Pulshöhenanalyse zeigt eine durch Rauschen und Störungen verbreiterte Linie im vollständig simulierten 'Energiespektrum'. Die Breite dieser Linie ist ein Maß für das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis, welches jedoch nun sowohl die Pulsform, die Datenaufzeichnungsparameter als auch die vollständige spektrale Information des Rauschens enthält. Bei bekannter Pulsform und spektraler Dichte des Rauschens lassen sich mit Hilfe des Computerprogramms die optimalen Datenaufzeichnungsparameter (Zeitfenster, Triggerzeitpunkt und Filtereinstellungen) ermitteln, so dass die Breite des simulierten Energiespektrums minimal wird. Sie entspricht der mit dem verwendeten Signalauswertungs-Algorithmus ultimativ erreichbaren Energieauflösung unter den gegebenen Bedingungen (vergl. Abschnitt 7.1.2).

⁴¹Wird das Kalorimeter ohne Testquelle betrieben, so kann alternativ ein Echtzeit-Spektrumanalysator benutzt werden.

⁴²'Weißes' Rauschen besitzt bis zur Bandbreitengrenze eine konstante spektrale Dichte, wogegen 'rosa' Rauschen eine Frequenzabhängigkeit f^α , mit $\alpha \approx -1$ zeigt.

Auch während der eigentlichen Datenaufzeichnung mit den zuvor bestimmten optimalen Datenaufzeichnungsparametern kann die erreichte elektronische Breite, und damit unter den vorherrschenden Bedingungen maximal erreichbare Energieauflösung kontrolliert werden. Dazu zeichnet man neben den Pulsen auch solche Signalabschnitte auf gleiche Weise auf, die nur das Ruhesignal enthalten. Wird nun der Musterpuls mit diesem Ruhesignal überlagert und das Ergebnis der Pulshöhenbestimmung zugeführt, so erhält man nach vielfachen Wiederholungen eine simulierte Pulshöhenverteilung, deren Form die 'elektronische Linienform' und deren Breite die 'elektronische Linienbreite' bezeichnet wird. Sowohl die Form als auch die Breite sind nur durch das Rauschen des Ruhesignals bestimmt. Genau diese Eigenschaft wird benutzt werden, um das in Abschnitt 7.3.2 dargestellte Energiespektrum der Testquelle bezüglich der Linienverbreiterungsmechanismen zu untersuchen.

4.6 Aufbau zur experimentellen Bestimmung von Magnetisierung und Pulshöhe

In den vorangegangenen Abschnitten wurden der Aufbau des Kalorimeters, die im Betrieb notwendige Temperaturregelung und die verwendete Signalverarbeitung beschrieben. Zunächst sollte jedoch das verwendete Sensormaterial auf dessen Eignung für ein hochauflösendes Kalorimeter untersucht werden.

Eine solche Sensorcharakterisierung besteht aus verschiedenen Teilen, für die geringfügig unterschiedliche Messaufbauten benötigt werden. Ein Aufbau ist das Kalorimeter selbst, mit der zuvor beschriebenen Methode der Signalverarbeitung, bei der einzelne Pulse bezüglich ihrer Form und Höhe, in der Regel in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Magnetfeld analysiert werden. Die entsprechenden Ergebnisse sollen im Abschnitt 5.2 diskutiert werden.

Aus chronologischer Sicht ist dies bereits der zweite Schritt. Zunächst sollte die grundsätzliche Eignung eines Materials für den Einsatz als Sensor geprüft werden. Dazu führt man Messungen der magnetischen Suszeptibilität, wiederum in Abhängigkeit von der Temperatur und des Magnetfeldes durch. Diese Messungen zeigen, ob sich ein Material (wie hier z.B. AuEr) tatsächlich im betrachteten Temperaturbereich paramagnetisch verhält und wie groß die Änderung der Magnetisierung pro Temperatureinheit ist. Darüberhinaus lässt sich auf diese Weise die Qualität der Einkopplung des vom Sensor erzeugten magnetischen Flusses in die Detektionsspule ermitteln.

Der für diese Messungsart benutzte Aufbau ist als Blockschaltbild in Abb. 4.21 dargestellt. Das Signal wird in einem Aufbau erzeugt, der als Kalorimeter für γ -Quanten entwickelt wurde.[Fle98][Sol99][Hor99] Der Aufbau unterscheidet sich von dem bisher beschriebenen Kalorimeter dadurch, dass sich der Sensor nicht direkt auf dem SQUID-Chip und damit innerhalb der SQUID-Schleife, sondern in einem vom SQUID-Sensor räumlich getrennten Probenhalter befindet. Die Probe ist von einer drahtgewickelten Detektionsspule umgeben, die den von ihr umschlossenen magnetischen Fluss aufnimmt und über einen supraleitenden Flusstransformator

in den SQUID-Sensor überträgt. Auch dieser Sensor wird von der beschriebenen SQUID-Elektronik ausgelesen.

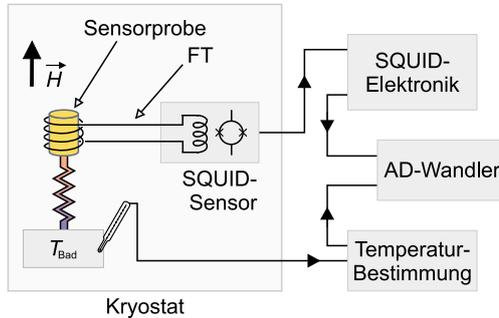


Abbildung 4.21:

Aufbau zur Charakterisierung des Sensors hinsichtlich der Magnetisierung und der Pulsformen. Der Sensor ist hier in einem Probenhalter lokalisiert, der über einen supraleitenden Flusstransformator (FT) mit dem räumlich getrennten SQUID-Sensor verbunden ist.

Durch die räumliche Trennung von SQUID-Sensor und Probe besitzt diese die Temperatur des Wärmebades. Darüberhinaus ist die Ausdehnung des benötigten Magnetfeldes auf den Ort des Probenhalters und die unmittelbare Umgebung beschränkt. Das bedeutet, dass das Magnetfeld am Ort der Josephson-Kontakte des SQUIDs vernachlässigt werden kann, während am Ort der Probe Magnetfelder über 10 mT erzeugt werden können.

Aufgrund dieser Eigenschaften wurden Magnetisierung und Pulsform und -höhe mit diesem speziellen Aufbau bestimmt. Dieses schließt das Studium der Pulshöhe und auch -form, aber auch der Magnetisierung der Sensorprobe ein. Die Magnetisierungsmessungen dienen später zusätzlich zur Bestimmung der wahren Sensortemperatur des in dieser Arbeit diskutierten Kalorimeters.

5. Eigenschaften von AuEr in Bezug auf die Anwendung als Sensor

Die Optimierung eines magnetischen Kalorimeters erfordert eine genaue Kenntnis verschiedener Eigenschaften der Sensormaterialien. Aus Gründen, die bereits dargelegt wurden, wurde bei den Experimenten, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit stattfanden, AuEr als Sensormaterial eingesetzt.

Eine Charakterisierung der entsprechenden Sensorprobe wurde bezüglich der Magnetisierung, der Thermalisierung und der Wärmekapazität durchgeführt.

5.1 Magnetisierung

Zur Bestimmung der Magnetisierung wurde ein spezieller, bereits beschriebener Messaufbau eingesetzt. Das Ergebnis der Messung, der temperaturabhängige Verlauf der Magnetisierung, ist in Abb. 5.1 für vier verschiedene Magnetfelder dargestellt. Wie für ein paramagnetisches Material erwartet, steigt die Magnetisierung mit

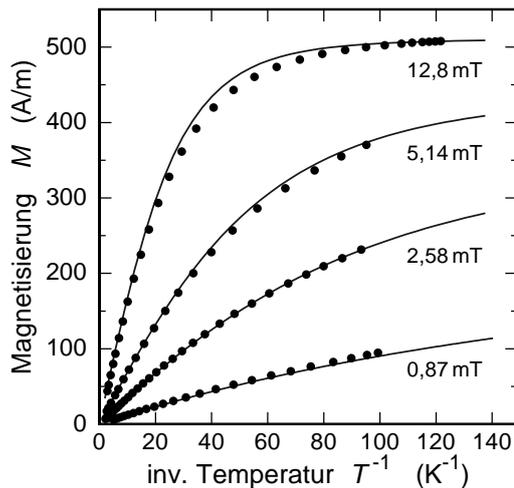


Abbildung 5.1:

Experimentell bestimmte Werte der Magnetisierung einer AuEr-Probe (300 ppm) als Funktion der inversen Temperatur. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis einer Berechnung mit Hilfe der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamilton-Operators der wechselwirkenden magnetischen Momente. Hierbei wurde ein Wechselwirkungsparameter von $\alpha = 10$ angenommen.

abnehmender Temperatur und zunehmendem äußerem Magnetfeld an. Die durchgezogenen Linien sind das Ergebnis der Berechnung mit der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamiltonoperators der wechselwirkenden magnetischen Mo-

mente.

Mit einem Wechselwirkungsparameter $\alpha = 10$ findet man eine sehr gute Übereinstimmung von den experimentellen Daten und der Berechnung. Die Abhängigkeit der berechneten Magnetisierung von α ist für ein Magnetfeld von $B = 5,14 \text{ mT}$ in Abb. 5.2 gezeigt. Zum Vergleich ist zusätzlich die Magnetisierung wechselwirkungsfreier magnetischer Momente eingezeichnet.

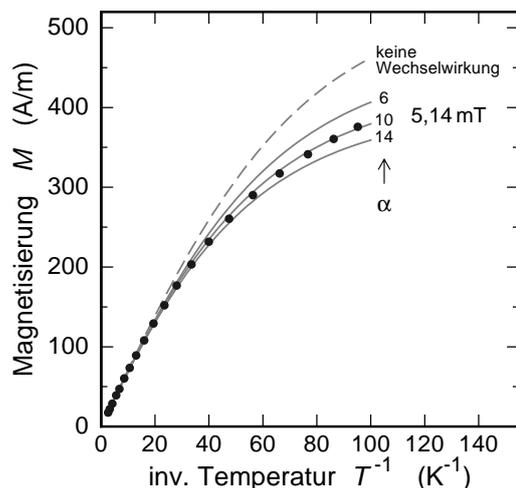


Abbildung 5.2:

Vergleich zwischen den experimentell bestimmten Werten der Magnetisierung einer AuEr-Probe (300 ppm) und den berechneten Werten für verschiedene Wechselwirkungsparameter sowie den Fall wechselwirkungsfreier magnetischer Momente. Das Magnetfeld beträgt $B = 5,14 \text{ mT}$. Die Berechnungen wurden mit der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamilton-Operators durchgeführt.

freier magnetischer Momente eingezeichnet. In diesem Fall sind weder die RKKY-Wechselwirkung noch die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung berücksichtigt. Die Abbildung zeigt, dass eine sehr gute Übereinstimmung bei der Wahl eines Wechselwirkungsparameters von $\alpha = 10$ erreicht wird. Dieses Ergebnis unterstreicht zum einen die Notwendigkeit, die Wechselwirkung der magnetischen Momente für das vorliegende AuEr-Sensormaterial (300 ppm) zu berücksichtigen und zum anderen die Genauigkeit, mit der eine Anpassung der Berechnungen an die experimentellen Daten vorgenommen werden kann.

5.2 Pulsform

Die Pulsform bei der Absorption eines Röntgenquants im Kalorimeter (im Folgenden als *Ereignis* bezeichnet) gibt Aufschluss über die Relaxationsvorgänge innerhalb des Sensors und die Thermalisierung dessen mit dem Wärmebad. Erstere werden durch die Kopplung des Systems der Leitungselektronen an das der magnetischen Momente bestimmt. Die Thermalisierung ist durch die Kopplung beider Systeme an das Wärmebad gegeben.

Diese Eigenschaften werden anhand eines typischen Einzelereignisses (hier die Absorption eines 122 keV γ -Quants) diskutiert, welches mit dem Aufbau für die Sensorcharakterisierung aufgenommen wurde. Da bei diesem Aufbau die Energie des γ -Quants direkt im Sensor deponiert wird und aus diesem durch eine schwache aber *direkte* Kopplung an das Bad abgeführt wird, soll der Signalverlauf in diesem Fall als *ideal* bezeichnet werden. Im Gegensatz dazu besitzt das in dieser Arbeit diskutierte Kalorimeter ein 'Zwischenreservoir' (das Siliziumsubstrat des SQUID-Chips), was

zu einer geringfügigen Veränderung der Signalform führt, die in Abschnitt 7.1.1 beschrieben werden soll.

Der in Abb. 5.3 dargestellte zeitliche Verlauf der Flussänderung im SQUID kann in zwei Bereiche unterteilt werden. Der erste Bereich ist der schnelle Signalanstieg, der einer raschen Temperaturerhöhung des Sensors entspricht. Der zweite ist der Signalabfall, der den Zeitbereich bis zum Erreichen der ursprünglichen Temperatur des Wärmebades wiedergibt.

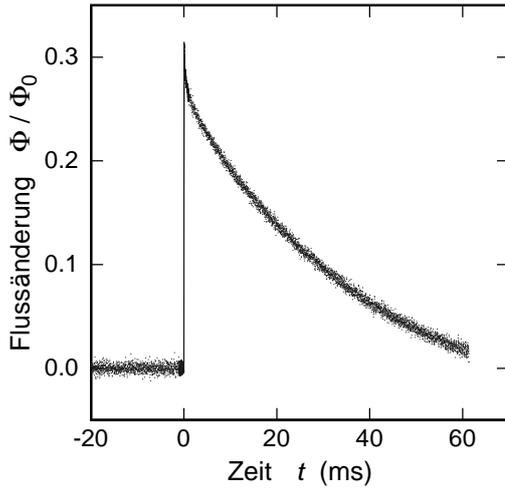


Abbildung 5.3:
Zeitlicher Verlauf der Flussänderung im SQUID bei Absorption eines γ -Quants mit der Energie $E_\gamma = 122$ keV.
($T = 47$ mK, $B = 1,9$ mT)

5.2.1 Signalanstieg

Die Energie des Röntgenquants wird zum Absorptionszeitpunkt im System der Leitungselektronen deponiert. Erst wenn diese Energie das System der magnetischen Momente erreicht, wird sie als Änderung der Magnetisierung sichtbar. Die Zeitkonstante τ_0 für diese Relaxation wird durch die Korringa-Beziehung bestimmt. Diese Zeitkonstante ist invers proportional zur Temperatur und sollte für AuEr bei einer Temperatur von $T = 10$ mK im Bereich von $\tau_0 = 0,1 \mu\text{s}$ liegen.[Sjo75] Durch die maximale Bandbreite und die Slewrate der SQUID-Ausleseelektronik bedingt ist die experimentell beobachtete Anstiegszeitkonstante auf ca. $\tau_0 \approx 20 \mu\text{s}$ reduziert.

Bei einer genauen Betrachtung des Signalanstiegs wird ein in der SQUID-Ausleseelektronik begründetes Artefakt deutlich. Die Begrenzung der Bandbreite und die limitierte Slewrate der Elektronik führen zu einem Signalverlauf wie er in Abb. 5.4 a) dargestellt ist. Das tatsächlich beobachtete Signal erscheint bezüglich seines Maximums kleiner, als es in Wirklichkeit wäre: Das wahre Signal - gestrichelt eingezeichnet - besitzt die Pulshöhe S_t , wogegen der am Ausgang der SQUID-Ausleseelektronik sichtbare Puls nur die Höhe S_g erreicht. Dieser scheinbar geringfügige Effekt wird durch ein weiteres Artefakt der SQUID-Elektronik verstärkt: Die Regelungsschaltung der Ausleseelektronik folgt dem wahren Signal mit einer zeitlichen Verzögerung t_{trig} . Dieser Effekt ist wahrscheinlich durch die Modulationsmethode der Elektronik bedingt (vergl. Abschnitt 4.2.2), seine genaue Ursache ist jedoch unklar. Bedingt durch diese Verzögerung wird die Reduktion der Signalamplitude jedoch

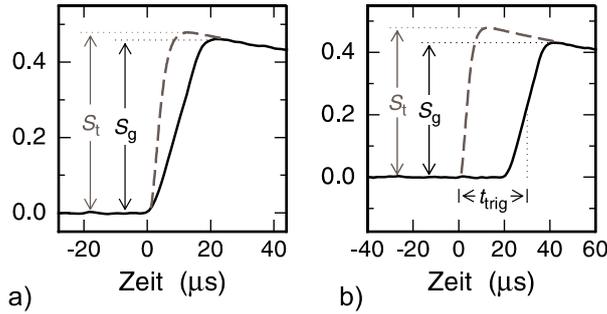


Abbildung 5.4:
Signalverlauf der Flussänderung
im Bereich des Anstiegs:
a) Der beobachtete Anstieg (—)
ist durch die Elektronik
gegenüber dem wahren
Anstieg (---) verlangsamt.
b) Der beobachtete Anstieg ist
zusätzlich zeitlich verschoben.

zusätzlich verstärkt (vergl. Abb. 5.4 b)).

Beide Effekte wirken sich besonders auf die genaue Bestimmung der Pulsformen aus, wenn die Zeitkonstante für den Signalabfall kleiner als ca. 1 ms ist. Dagegen besitzt der zeitliche Verlauf der Flussänderung bei Absorption von Röntgenquanten des in dieser Arbeit beschriebenen Kalorimeters vergleichsweise lange Thermalisierungszeitkonstanten (> 10 ms). Daher sind diese Effekte bei der Bestimmung der Pulshöhe in diesem Fall unbedeutend.

5.2.2 Signalabfall

Der Signalabfall kennzeichnet die Relaxation der in den Sensor eingebrachten Wärme zum Wärmebad. Bei einer direkten Kopplung zwischen Sensor und Wärmebad erwartet man im einfachsten Fall eine exponentiell abklingende Temperatur (bzw. zunehmende Magnetisierung). Dieses exponentielle Verhalten wird im Grenzfalle zu großen Zeiten t auch tatsächlich beobachtet. Zu kleinen Zeiten ($t < 1$ ms) hin erkennt man jedoch in Abb. 5.3 eine kleine 'Spitze' in der Signalförm. In diesem Bereich weicht die Signalförm deutlich von dem erwarteten einfachen exponentiellen Abklingverhalten ab.

Scheinbar wird ein Teil der absorbierten Energie des Photons von einem zusätzlichen Wärmereservoir aufgenommen, bevor die Wärme auf einer deutlich längeren Zeitskala an das Wärmebad abgeführt wird. Tests, in denen die Kopplung an das Wärmebad um mehrere Größenordnungen variiert wurde, haben gezeigt, dass die Zeitkonstante für den Wärmetransfer in das zusätzliche Wärmereservoir von der Kopplung an das Wärmebad unabhängig ist (vergl. [Fle98][Sol99]). Der Ursprung dieses zusätzlichen Systems muss daher innerhalb des Sensors selbst liegen.

Im Rahmen der von K. Horst [Hor99] durchgeführten Charakterisierung des AuEr-Sensormaterials wurde die Pulsform hinsichtlich ihrer Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit untersucht. Dabei wurde gezeigt, dass die jeweilige Pulsform $\Phi(t)$ in guter Näherung durch die Summation zweier Exponentialterme beschrieben werden kann. Unter Annahme eines stufenförmigen Signalanstiegs gelte

$$\Phi(t) = \Phi_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + \Phi_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right). \quad (5.1)$$

In den Abbildungen 5.5 und 5.6 sind die Parameter τ_1 , τ_2 , Φ_1 und Φ_2 als Funktion des Magnetfeldes für eine Vielzahl verschiedener Badtemperaturen dargestellt.

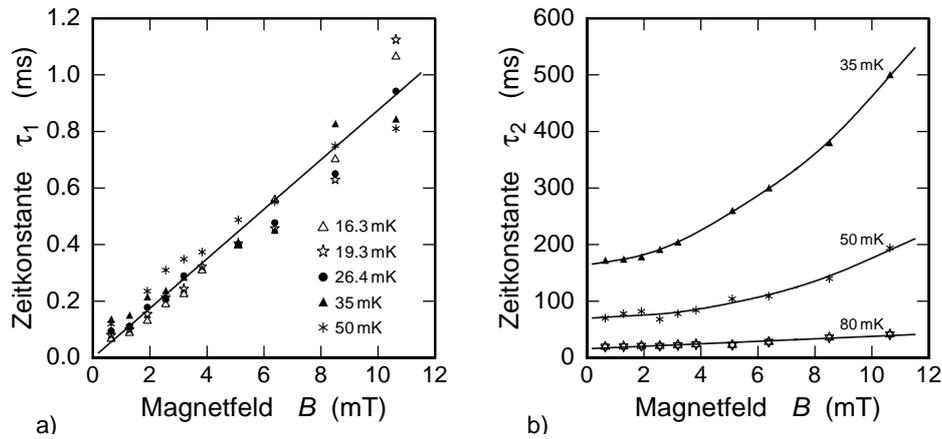


Abbildung 5.5: Thermalisierungszeitkonstanten τ_1 , τ_2 als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Badtemperaturen. Die eingezeichneten Kurven verbinden die Datenpunkte.

Die Thermalisierungszeitkonstante τ_1 liegt im Bereich von 0,1 ms bis 1,0 ms und ist innerhalb der Messgenauigkeit temperaturunabhängig. Sie ist so kurz, dass in diesem Fall die oben genannten elektronischen Artefakte berücksichtigt werden müssen.

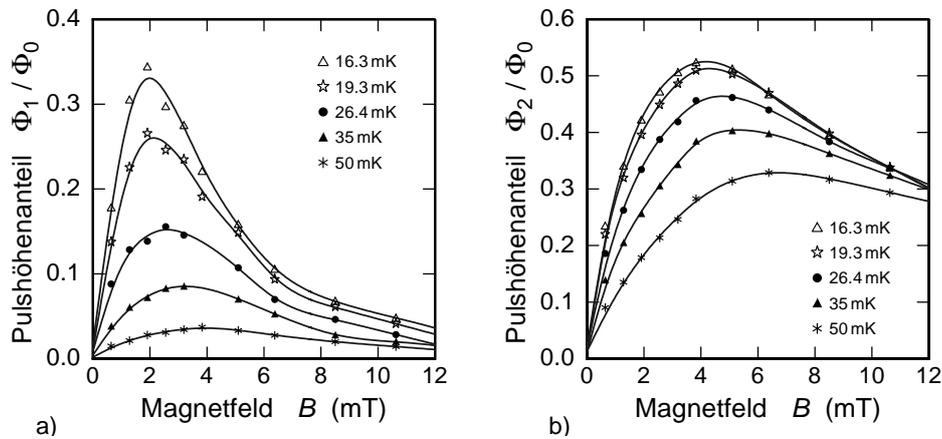


Abbildung 5.6: Pulshöhenanteile Φ_1 und Φ_2 als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Badtemperaturen. Die eingezeichneten Kurven verbinden die Datenpunkte.

Die thermische Kopplung des Sensors an das Wärmebad war in dem zur Sensorcharakterisierung verwendeten Aufbau so gewählt, dass τ_2 im Vergleich zu τ_1 wesentlich größer war; sie lag für diesen Aufbau im Bereich von 100 ms bis 2000 ms. Die größten Werte wurden nur für tiefste Badtemperaturen ($T_{\text{Bad}} < 30$ mK) erreicht. Die entsprechenden Datenpunkte sind in Abb. 5.5 b) nicht enthalten, da deren Bestimmung durch den geringen mittleren Abstand zweier aufeinanderfolgender γ -Ereignisse erheblich in ihrer Genauigkeit eingeschränkt wurde.

Thermodynamisches Modell

Zur Beschreibung des experimentell bestimmten Relaxationsverhaltens wurde ein Modell entwickelt, welches neben dem System der magnetischen Momente und dem der Leitungselektronen auch ein zusätzliches System enthält. Dieses Modell ist in Abb. 5.7 skizziert. In Abschnitt 5.2.1 wurde gezeigt, dass der im Wärmetransfer

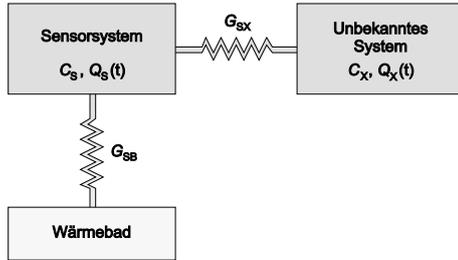


Abbildung 5.7:

Schematisches Bild des thermodynamischen Modells für die Beschreibung des beobachteten Thermalisierungsverhaltens des Sensors. Die verwendeten Größen werden im Text definiert.

zwischen dem System der Leitungselektronen und dem System der magnetischen Momente begründete Signalanstieg mit einer Zeitkonstante von $\tau_0 \lesssim 20 \mu\text{s}$ sehr schnell ist. Diese Zeitkonstante ist viel kleiner als die Zeitkonstanten des Signalabfalls τ_1 und τ_2 . Daher wird das System der Leitungselektronen mit dem der magnetischen Momente in der folgenden Diskussion als das *Sensorsystem* mit der Gesamtwärme­kapazität C_S und dem Wärmeinhalt $Q_S(t)$ zusammengefasst. Für das unbekannte System 'X' gelten analog die Größen C_X und $Q_X(t)$. Die thermische Kopplung zwischen diesen beiden Systemen sei G_{SX} , die zwischen dem Sensorsystem und dem Wärmebad sei G_{SB} . Zur Vereinfachung soll angenommen werden, dass die direkte Kopplung des unbekannten Systems an das Wärmebad vernachlässigt werden darf und dass das Kalorimetersignal ausschließlich durch den Wärmeinhalt im System der magnetischen Momente bestimmt ist.

Der Wärmefluss in diesem Modell wird durch das gekoppelte, lineare Differentialgleichungssystem

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} Q_S(t) &= - \left(\frac{Q_S(t)}{C_S} - \frac{Q_X(t)}{C_X} \right) G_{SX} - \frac{Q_S(t)}{C_S} G_{SB} \\ \frac{\partial}{\partial t} Q_X(t) &= \left(\frac{Q_S(t)}{C_S} - \frac{Q_X(t)}{C_X} \right) G_{SX} \end{aligned} \quad (5.2)$$

beschrieben. Unter der Randbedingung $Q_S(t=0) = Q_0$ und $Q_X(t=0) = 0$ besitzt dieses Gleichungssystem die Lösung

$$Q_S(t) = Q_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + Q_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \quad \text{mit} \quad Q_1 + Q_2 = Q_0. \quad (5.3)$$

Für die hier betrachteten kleinen Wärmeeinträge Q_0 gilt ein linearer Zusammenhang zwischen $Q_S(t)$ und $\Phi(t)$ und es folgt Gl. 5.1. Wir wollen nun aus den experimentell zugänglichen Größen τ_1 , τ_2 , Φ_1 und Φ_2 die zur Beschreibung des thermodynamischen Systems benötigten Größen C_S , C_X , G_{SX} und G_{SB} bestimmen. Dazu werden die funktionalen Zusammenhänge

$$\begin{aligned} C_S &= C_S(\tau_1, \tau_2, \Phi_1, \Phi_2), \\ C_X &= C_X(\tau_1, \tau_2, \Phi_1, \Phi_2), \\ G_{SX} &= G_{SX}(\tau_1, \tau_2, \Phi_1, \Phi_2) \quad \text{und} \\ G_{SB} &= G_{SB}(\tau_1, \tau_2, \Phi_1, \Phi_2) \end{aligned} \quad (5.4)$$

benutzt. Diese stellen zusammen ein nichtlineares System aus vier Gleichungen dar, welches jedoch nur die Dimension drei besitzt.¹ Die Wärmekapazität des Sensorsystems C_S kann allerdings aus der bekannten Energie der Röntgenquanten und der Pulshöhe $\Phi = \Phi_1 + \Phi_2$, unter Zuhilfenahme der experimentell bestimmten Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung oder aus den vorgestellten Berechnungen (vergl. Abschnitt 3.4.1) bestimmt werden. Im hier vorliegenden Fall wurde die Wärmekapazität berechnet.² Die Ergebnisse der Lösungen des Gleichungssystems sind in Abb. 5.8 dargestellt.

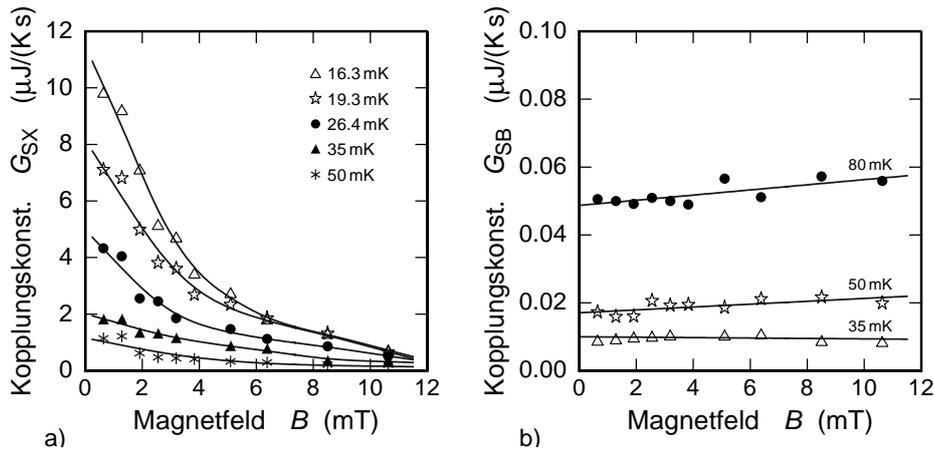


Abbildung 5.8: Kopplungskonstanten G_{SX} und G_{SB} als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Badtemperaturen. Es wurde eine Sensorgröße von $7,23 \cdot 10^{-6}$ mol angenommen. Die eingezeichneten Kurven verbinden die Datenpunkte.

Während die Kopplung des Sensorsystems zum unbekanntem System G_{SX} eine vergleichsweise starke Magnetfeldabhängigkeit zeigt, ist die Kopplung zum Wärmebad G_{SB} , im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig vom Magnetfeld. Darüberhinaus zeigt sie eine quadratische Temperaturabhängigkeit, deren Ursprung bislang nicht geklärt ist.

Die aus den Messungen bestimmte molare Wärmekapazität c_x ist in Abb. 5.9 als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Temperaturen dargestellt. Die abgebildeten Werte der Wärmekapazität c_x betragen bis zu 20% der Gesamtwärmekapazität des Sensorsystems. Für die tiefsten betrachteten Temperaturen zeigt die Wärmekapazität des unbekanntem Systems eine Magnetfeldabhängigkeit, die zu hohen Temperaturen hin deutlich abnimmt. Mögliche Ursachen für die Beobachtung dieses unbekanntem Wärmereservoirs werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

¹Dieser Sachverhalt folgt daraus, dass für die Berechnung von Q_1 und Q_2 aus den Größen Φ_1 und Φ_2 bereits die Wärmekapazität C_S benötigt wurde.

²Ein möglicher systematischer Fehler der berechneten Wärmekapazität hätte jedoch auf diese Weise Einfluss auf alle drei abhängigen Parameter C_X , G_{SX} und G_{SB} !

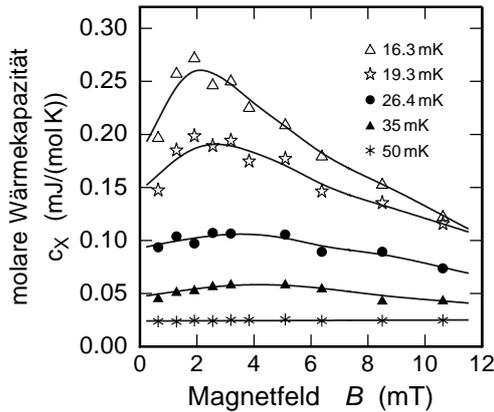


Abbildung 5.9:

Molare Wärmekapazität des unbekanntes Systems c_x als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Temperaturen.

5.3 Unbekanntes Wärmereservoir

Die Existenz des unbekanntes Wärmereservoirs wurde nicht nur für die hier verwendete Probe, AuEr 300 ppm, sondern für alle bisher untersuchten Konzentrationen zwischen 60 ppm und 600 ppm beobachtet. Zusätzlich konnte von Herrmannsdörfer *et al.* [Her99] anhand einer unabhängigen Vergleichsmessung mit einem kalorimetrischen Verfahren gezeigt werden, dass die Gesamtwärmekapazität einer AuEr-Probe der Konzentration 660 ppm eine Temperaturabhängigkeit von näherungsweise $C_{\text{ges}} \propto T^{-1,1}$ im untersuchten Temperaturbereich zwischen $70 \mu\text{K}$ und 10mK zeigt, welche in qualitativer Übereinstimmung mit Wärmekapazität C_x ist. Herrmannsdörfer *et al.* erklärten diese unerwartet hohen Werte der Wärmekapazität durch den Beitrag der Goldkerne in der verwendeten Probe.

Das Sensormaterial AuEr ist eine binäre Legierung. Die Isotopenzusammensetzung vom Wirtsmetall Gold ist auf das einzige, natürlich vorkommende Isotop ^{197}Au beschränkt. Dieses Isotop trägt einen Kernspin von $3/2$ mit einem vergleichsweise kleinen magnetischen Moment von $0,143 \mu_N$ und einem Quadrupolmoment von $Q = +0.58 \text{ barn}$ [Pob95], wobei μ_N für das Kernmagneton³ steht. Der Spin eines Erbiumions kann mit einem Goldkernspin auf zwei verschiedene Arten wechselwirken. Die magnetische Wechselwirkung ist über die Dipol-Dipol- oder die indirekte Austauschwechselwirkung möglich, und die elektrische Wechselwirkung ist durch das Quadrupolmoment des Goldkerns innerhalb eines elektrischen Feldgradienten möglich.

Es zeigt sich, dass sowohl die Dipol-Dipol-Wechselwirkung als auch die indirekte Austauschwechselwirkung zu schwach sind, um eine Aufspaltung der Kernniveaus zu bewirken, die groß genug ist, um die beobachtete Wärmekapazität zu erklären.

Dagegen ist es nicht unplausibel, dass der substitutionelle Einbau von Erbiumionen einen elektrischen Feldgradienten am Ort der benachbarten Goldatome erzeugt, der über das Quadrupolmoment des Goldkerns zu einer genügend großen Quadrupolaufspaltung führt. Eine quantitative Abschätzung dieses Einflusses ist jedoch nicht ohne genauere Berechnungen des elektrischen Feldgradienten möglich. Auf ähnliche Weise könnten Versetzungen im Goldgitter zur Ausbildung eines elektrischen

³Kernmagneton: $\mu_N \approx 5,05 \cdot 10^{-27} \text{ J/T}$.

Feldgradienten führen.

Mit dieser Vorstellung lässt sich der sehr große Betrag zur Wärmekapazität von AuEr bei tiefen Temperaturen erklären. Allerdings ist nicht klar, ob auch die Wärmekapazität C_X durch den Beitrag der Kernspins verursacht wird, da die beobachtete Magnetfeldabhängigkeit dieser Größe im Rahmen dieser Vorstellung nicht verstanden werden kann.

Möglicherweise ist die Ursache für das Auftreten von C_X in einer inhomogenen Verteilung der Erbiumionen im Goldgitter, d.h. langsam relaxierender Cluster, begründet. Eine endgültige Aussage über diese Frage ist derzeit leider noch nicht möglich.

5.4 Magnetfeldabhängigkeit der Signalhöhe

Auf der Grundlage des vorgestellten thermodynamischen Modells (Abb. 5.7) wird die Gesamtpulshöhe Φ bei der Absorption eines γ -Quants im Kalorimeter allein durch die Sensorwärmekapazität C_S und die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung bestimmt. Alle diese Größen lassen sich mit Hilfe der in Abschnitt 3.4 beschriebenen Methoden berechnen.

In Abb. 5.10 ist die Gesamtpulshöhe Φ bei der Absorption eines γ -Quants der Energie $E_\gamma = 122$ keV in einem AuEr-Sensor mit der Konzentration von 300 ppm als Funktion des Magnetfeldes für sechs verschiedene Temperaturen dargestellt. Ebenfalls eingezeichnet ist die Anpassung der Ergebnisse der Berechnungen an die

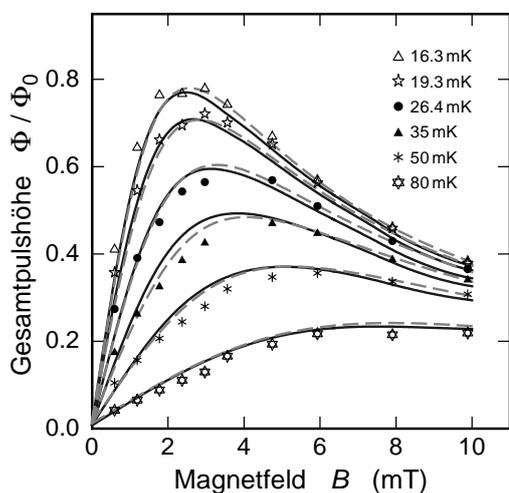


Abbildung 5.10:

Gesamtpulshöhe Φ bei der Absorption eines Röntgenquants der Energie 122 keV in einem AuEr-Sensor (300 ppm) als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene Temperaturen. Mit eingezeichnet sind die folgenden Kurven:

(- -) Das Ergebnis der Berechnung in der Molekularfeld-Näherung mit Wechselwirkungsparameter $\alpha_{MF} = 5$, und
 (—) das Ergebnis der exakten Diagonalisierung des Hamilton-Operators mit einem Wechselwirkungsparameter $\alpha_{ED} = 7$.

experimentellen Datenpunkte. Die durchgezogenen, dunklen Linien repräsentieren die Ergebnisse der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamilton-Operators der wechselwirkenden magnetischen Momente mit einem Wechselwirkungsparameter $\alpha_{ED} = 7$. Die gestrichelten, hellen Linien stellen die Ergebnisse der Berechnung in der Molekularfeld-Näherung mit $\alpha_{MF} = 5$ dar. Für beide Berechnungsmethoden kann unabhängig voneinander die Aussage getroffen werden, dass eine gute Übereinstim-

mung zwischen den experimentellen Daten und den Ergebnissen der Berechnungen für die jeweils gewählten Wechselwirkungsparameter erzielt werden kann. Die verwendeten Parameter unterscheiden sich geringfügig, was in Abschnitt 3.4.4 bereits diskutiert wurde.

Der Wechselwirkungsparameter $\alpha_{\text{MF}} = 5$, mit dem die Magnetfeldabhängigkeit der Pulshöhe der in dieser Arbeit verwendeten AuEr-Probe mit einer Konzentration von 300 ppm in der Molekularfeld-Näherung beschrieben werden konnte, ist in Übereinstimmung mit dem Wechselwirkungsparameter, der für eine AuEr-Probe mit einer Konzentration von 480 ppm bestimmt wurde. Diese Übereinstimmung konnte erzielt werden, obwohl das Erbium im letzteren Fall aus der natürlichen Isotopenzusammensetzung bestand und daher ca. 23 % des kernspintragenden Isotops ^{167}Er enthielt. Dessen Hyperfein-Wechselwirkung führt zu einer Aufspaltung des Grundzustands-Multipletts, die in den Berechnungen mit der Methode der Molekularfeld-Näherung berücksichtigt wurde.[Fle00]

Der Wechselwirkungsparameter $\alpha_{\text{ED}} = 7$, der unter Anwendung der Methode der exakten Diagonalisierung des Hamilton-Operators die beste Übereinstimmung zwischen den berechneten und den experimentell bestimmten Werten der Pulshöhe in Abhängigkeit vom Magnetfeld ergab, ist jedoch deutlich geringer als jener Parameter $\alpha_{\text{ED}} = 10$, der zur Beschreibung der Magnetisierung der Probe benutzt wurde. Die Ursache für diesen Unterschied ist möglicherweise darin begründet, dass die Messungen auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfanden: Die Magnetisierung wird im quasistatischen Grenzfall bestimmt, wogegen die Pulshöhe auf einer sehr kurzen Zeitskala (wenige 1 ms) ermittelt wird. In diesem Zeitbereich ist insbesondere die Wärmekapazität C_X von Bedeutung. Daher kann eine Aussage über die Ursache für den Unterschied der verwendeten Wechselwirkungsparameter wahrscheinlich erst getroffen werden, wenn der Ursprung des zusätzlichen Wärmereservoirs bekannt ist.

6. Betrieb des Kalorimeters ohne Quelle

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die Theorie und der experimentelle Aufbau magnetischer Kalorimeter, und zuletzt die Eigenschaften von $AuEr$ in Bezug auf dessen Anwendung als Sensor beschrieben. Im Folgenden werden nun Messungen mit dem in dieser Arbeit beschriebenen Kalorimeter diskutiert, die zur Bestimmung der Sensortemperatur und zur Charakterisierung des Ruhesignals notwendig waren.

6.1 Sensortemperatur

Bei dem in dieser Arbeit vorgestellten magnetischen Kalorimeter ist die Temperatur des Sensors grundsätzlich höher als die Temperatur des Kupferträgers, auf dem der SQUID-Chip mit dem Sensor fixiert ist. Die Ursache hierfür ist im Betrieb des SQUID-Chips selbst begründet. Durch den benötigten Bias-Strom zur Ansteuerung des SQUIDs wird elektrische Leistung in den Shunt-Widerständen dissipiert. Die entstehende Wärme wird auf der Oberfläche des SQUID-Chips frei und muss durch das Siliziumsubstrat an das Wärmebad abgegeben werden (vergl. Abschnitt 4.2.3). Dadurch bedingt bildet sich zwischen der Chip-Oberfläche und dem Wärmebad ein Temperaturgradient aus, weshalb der Sensor eine höhere Temperatur als das Wärmebad besitzt.

Die Sensortemperatur kann jedoch im Experiment ermittelt werden, indem die Magnetisierung des Sensors mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Messaufbau bestimmt wird und mit dem Ergebnis der Messung mit dem in Abschnitt 4.6 beschriebenen Aufbau verglichen wird. Die so ermittelte Sensortemperatur ist in Abb. 6.1 als Funktion der Badtemperatur für verschiedene Bias-Ströme dargestellt. Man erkennt, dass die beiden Temperaturwerte für hohe Temperaturen identisch sind. Zu tiefen Temperaturen hin zeigen die Kurven eine deutliche Erhöhung der Sensor- gegenüber der Badtemperatur. Die Erhöhung ist, wie erwartet, umso größer, je höher die Bias-Stromstärke gewählt wurde.

Die Wahl des optimalen Bias-Stromes hängt jedoch zusätzlich vom Magnetfeld ab, welches am Ort des Sensors und daher auch an dem der Josephson-Kontakte

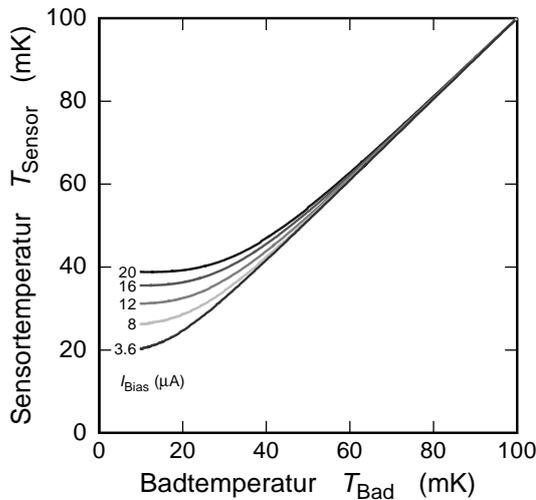


Abbildung 6.1:
Sensortemperatur in Abhängigkeit von der Badtemperatur für fünf verschiedene Bias-Stromstärken I_{Bias} , aufgenommen mit dem SQUID-Chip vom Typ 'SSC003'.

herrscht. Für das verwendete SQUID gilt die folgende empirische Gesetzmäßigkeit:

$$I_{\text{Bias,opt}} \approx \left(16 - \frac{B}{0,25 \text{ mT}}\right) \mu\text{A}, \text{ mit } 0 < B < 3 \text{ mT}. \quad (6.1)$$

Bei einem typischen Magnetfeld von 3 mT lag die optimale Bias-Stromstärke bei ca. $4 \mu\text{A}$,¹ d.h., dass die minimal erreichbare Sensortemperatur bei ca. 20 mK lag. Im weiteren Text soll der Begriff *Temperatur* auf die Sensortemperatur bezogen werden.

Es sei jedoch darauf hingewiesen, dass die Erhöhung der Sensor- gegenüber der Badtemperatur keine prinzipielle Eigenschaft des magnetischen Kalorimeters, sondern hier rein experimenteller Natur ist. Im Zuge der anwendungsspezifischen Entwicklung von SQUID-Chips kann Sorge getragen werden, die dissipierte Leistung zum einen so klein wie möglich zu halten und zum anderen diese vom Sensor separiert an das Wärmebad abzuleiten, um ein Aufheizen desselben zu vermeiden. Dieses wurde in einem ersten Test bereits erfolgreich gezeigt.

6.2 Rauschen des Ruhesignals

Rauschen ist, im weitesten Sinne, jegliche ungewollte Störung die dem wahren Signal überlagert ist. Eine typische *Rausch*-Quelle ist beispielsweise das thermische Rauschen der Spannung, die über einem Widerstand abfällt. Rauschen besitzt ein kontinuierliches Frequenzspektrum. Es unterscheidet sich diesbezüglich von 'Störungen', deren Form zeitlich periodisch ist und daher im Frequenzspektrum diskrete Linien mit endlicher Breite zeigt. Die bekannteste Quelle für derartige Störungen ist das '50 Hz-Brummen' von nicht perfekt geglätteter, gleichgerichteter Spannung aus einem Netzteil.

¹Nur geringfügig kleinere Werte reduzierten den Hub der Spannungs-Fluss-Kennlinie (vergl. Abb. 4.1 c)) drastisch, so dass die FLL-Elektronik den eingestellten Arbeitspunkt nicht halten kann.

Das Rauschen eines magnetischen Kalorimeters ist eine Überlagerung unterschiedlicher Beiträge, die im Folgenden einzeln beschrieben werden.

Rauschen des SQUID-Magnetometers

Die erste hier beschriebene Rauschquelle findet ihre Ursache im SQUID-Magnetometers selbst und ist insofern von prinzipieller Bedeutung für das magnetische Kalorimeter. Die in Abb. 6.2 dargestellte Frequenzabhängigkeit der spektralen Rauschdichte wurde mit dem verwendeten SQUID-Chip, fixiert auf dem Kupferträger, jedoch ohne Sensorbestückung bei einer Temperatur von $T = 4,2\text{ K}$ aufgenommen. Die

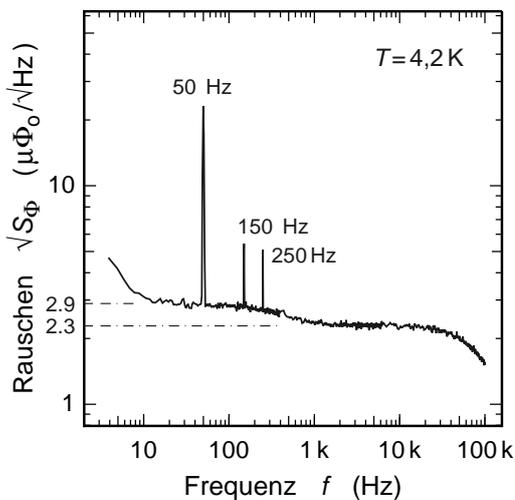


Abbildung 6.2:

Spektrale Dichte des Flussrauschens des SQUID-Magnetometers als Funktion der Frequenz vor der Sensorbestückung. Der SQUID-Chip ist auf dem Kupferträger fixiert.

spektrale Dichte des Rauschens ist in dem dargestellten Frequenzintervall nahezu konstant. Nur bei den Frequenzen 50 Hz, 150 Hz und 250 Hz erkennt man deutliche Spitzen, die auf eine Störung durch das Stromnetz zurückzuführen sind.

Zu tiefen Frequenzen hin ($f < 10\text{ Hz}$) wird ein Beitrag mit einer spektralen Dichte $S_\Phi \propto f^{-1}$ sichtbar. Diesem sogenannten $1/f$ -Rauschen² liegen in diesem Fall mindestens zwei unterschiedliche Beiträge zugrunde: Spontane Schwankungen des kritischen Stromes der Josephson-Kontakte [Rog84] und die Bewegung von magnetischen Flussschläuchen innerhalb der supraleitenden Dünnschichtstrukturen [Koch83]. Charakterisiert wird die spektrale Dichte von $1/f$ -Rauschen häufig durch die Frequenz, bei der sie den Wert des weißen Rauschens annimmt. Diese Frequenz wird oft als '1/f corner frequency' bezeichnet und liegt hier bei ca. 5 Hz. Dieser Wert ist verhältnismäßig klein, weshalb das $1/f$ -Rauschen des SQUID-Magnetometers von vernachlässigbar geringer Bedeutung ist.

Zu höheren Frequenzen schließt sich der Bereich des weißen Rauschens an. Dessen Ursprung ist das thermische Rauschen (häufig Nyquist- oder Johnson-Rauschen genannt [Nyq28] [Joh28]) der Shunt-Widerstände auf dem SQUID-Chip. Es besitzt eine konstante spektrale Dichte, die sich bis zur Bandbreitenbegrenzung der Elektronik erstreckt. Die spektrale Dichte des Rauschens zeigt eine Temperaturabhängigkeit

²Für eine detaillierte Beschreibung der Eigenschaften von $1/f$ -Rauschen sei auf die Buchveröffentlichung von Motchenbacher verwiesen. [Mot93]

$S_{\phi} \propto T$, weshalb eine Reduktion der Temperatur der Widerstände das Rauschen verringert. Häufig, und so auch in diesem Fall, ist der thermische Kontakt der Widerstände zum Substrat des Chips nur über deren verhältnismäßig kleine Kontaktfläche gegeben. Aus diesem Grund kann die Temperatur der Widerstände gegenüber dem Substrat typischerweise um einige 100 mK erhöht sein, [Wel87] und die spektrale Dichte des Rauschens wird zu tiefen Temperaturen hin von der Temperatur des Chip-Substrates unabhängig. Durch die Verwendung großflächiger Widerstände lässt sich das Rauschen zukünftig verringern.

Im Vergleich zu dem beschriebenen Eigenrauschen des SQUIDs ist das Rauschen der SQUID-Ausleseelektronik (auf das Rauschen in Einheiten des magnetischen Flusses umgerechnet) mit $\sqrt{S_{\phi}} = 1 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ vernachlässigbar gering.

Idealerweise sollte das Frequenzspektrum der Dichte des thermischen Widerstandsrauschens konstant sein. Die erkennbare geringfügige Erhöhung der Dichte unterhalb von ca. 1 kHz resultiert aus der thermischen Bewegung der Leitungselektronen im Kupferträger. Eine Beschreibung dieser Rauschquelle ist der Inhalt des nachfolgenden Abschnittes.

Thermische Bewegung der Leitungselektronen

Das Wärmebad, an das der Sensor über das Siliziumsubstrat thermisch gekoppelt ist, besteht aus einem elektrisch leitenden Material. Thermisch angeregt vollziehen die Leitungselektronen innerhalb dieses Leiters ungerichtete Bewegungen. Aus der Bewegung jedes einzelnen Elektrons resultiert daher ein zeitlich fluktuierendes Magnetfeld, welches einen fluktuierenden magnetischen Fluss innerhalb der nahen SQUID-Schleife erzeugt, der als Rauschen des Kalorimetersignals sichtbar ist.

Dem Theorem von Nyquist [Nyg28] folgend haben Varpula *et al.* [Var84] die spektrale Dichte des thermischen Rauschens der magnetischen Flussdichte S_B , in der Umgebung einer unendlich ausgedehnten leitenden Platte der Dicke t berechnet. Im Grenzfall kleiner Frequenzen ($f \rightarrow 0$) kann auf die Berücksichtigung der Eindringtiefe des Magnetfeldes verzichtet werden, und die spektrale Dichte kann gemäß

$$S_B = \left(\frac{\mu_B}{2}\right)^2 \frac{\sigma k_B T}{2\pi} \frac{t}{z(z+t)} \quad (6.2)$$

analytisch berechnet werden. Hier bezeichnet z den Abstand des Beobachtungspunktes von der Leiteroberfläche und σ die elektrische Leitfähigkeit des Leiters. Zu höheren Frequenzen hin muss die Eindringtiefe berücksichtigt werden. In diesem Fall fällt die spektrale Dichte mit $f^{-3/2}$ ab, eine quantitative Berechnung kann jedoch nur auf numerische Weise erfolgen.

Im vorliegenden Fall befindet sich die vom fluktuierenden magnetischen Fluss durchsetzte SQUID-Schleife mit dem Radius $R = 25 \mu\text{m}$ im Abstand $z = 0,6 \text{ mm}$ von der Oberfläche des elektrisch leitenden Kupferträgers, für den $t \gg z$ angenommen werden darf. Unterhalb von ca. $f_g = 1 \text{ kHz}$ ist der zusätzliche Beitrag zum magnetischen Flussrauschen $\sqrt{S_B} \approx 1,4 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$. Daraus folgt eine elektrische Leitfähigkeit des Kupferträgers zu $\sigma \approx 1,4 \cdot 10^{-8} \Omega \text{ cm}$. Dieser Wert ist in sehr

guter Übereinstimmung mit einer typischen Leitfähigkeit von unbehandeltem Kupfer³ bei tiefen Temperaturen von $\sigma \approx 1 \cdot 10^{-8} \Omega \text{ cm}$ [Pob95].

Offensichtlich ist es genau dieser Rauschbeitrag, der die Dichte des in Abb. 6.2 dargestellten weißen Rauschens bei Frequenzen unterhalb von ca. 1 kHz geringfügig anhebt. Diese Anhebung tritt jedoch nur hervor, wenn, wie oben beschrieben, das weiße Rauschen des SQUID-Magnetometers *ohne* Sensorbestückung bestimmt wird.

Auch der Sensor ist ein Leiter dessen Rauschen durch die Bewegung der Leitungselektronen berücksichtigt werden muss. Zwar sind dessen Abmessungen um Größenordnungen kleiner als die des Kupferträgers, er befindet sich jedoch in einem Abstand von nur $2 \mu\text{m}$ bzw. $15 \mu\text{m}$ von der SQUID-Schleife. Um dessen Einfluss auf das Gesamttrauschen berechnen zu können, muss die Geometrie des Sensors berücksichtigt werden. Dazu wurde eine numerische Integration, wie von T. Gillespie [Gil98] beschrieben, durchgeführt. Aus Gründen der Rechenzeit wurde auf eine Berücksichtigung der frequenzabhängigen Eindringtiefe des Magnetfeldes verzichtet.

Die Leitfähigkeit des AuEr-Sensormaterials beträgt $\sigma = x \times 6,7 \cdot 10^{-4} \Omega \text{ cm}$, wobei x die Konzentration der Erbiumionen beschreibt. [Ara66] [Edw68] Mit der hier vorliegenden Konzentration von 300 ppm folgt $\sigma = 0,2 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$. Der verwendete Sensor besitzt einen Radius $r = 25 \mu\text{m}$, eine Dicke von $t = 25 \mu\text{m}$, und dessen Abstand zur SQUID-Schleife betrage $z = 2 \mu\text{m}$. Bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ K}$ folgt damit ein Wert für die spektrale Dichte des Flussrauschens von $\sqrt{S_\Phi} \approx 5 \mu\Phi_o / \sqrt{\text{Hz}}$ für Frequenzen unterhalb von ca. 70 kHz. Dieser Beitrag dominiert daher das Gesamttrauschen bis hin zu hohen Frequenzen, was in Abb. 6.3 veranschaulicht wird. In dieser Abbildung ist das Rauschen des SQUID-Magnetometers vor und nach der Sensorbestückung jeweils bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ K}$ dargestellt. Der oben berechnete Wert für $\sqrt{S_\Phi}$ ist im Rahmen der Genauigkeit der Berechnungen mit dem experimentell bestimmten Wert verträglich. Die Grenzfrequenz des Rauschens zu hohen Frequenzen ist aufgrund der begrenzten Bandbreite der SQUID-Ausleselektronik und des Eingangsfilters nicht zu bestimmen. Für die Temperatur von $T = 4,2 \text{ K}$ ist somit gezeigt, dass das Rauschen durch die thermische Bewegung der Leitungselektronen im Sensor dominiert wird.

Die spektrale Dichte dieses Rauschens zeigt jedoch eine Temperaturabhängigkeit, die durch Gl. 6.2 beschrieben wird. Um dieses Verhalten zu untersuchen, wurde anstelle des AuEr-Sensors ein Stück undotiertes Gold der Reinheit 5N in Form eines kleinen Plättchens mit den Abmessungen $100 \times 100 \times 25 \mu\text{m}^3$ eingesetzt. Es wurde dieses Material eingesetzt, da dessen elektrische Leitfähigkeit größer als die des AuEr-Sensormaterial ist, weshalb das Rauschen durch die thermische Bewegung der Leitungselektronen deutlicher hervortritt. In Abb. 6.4 ist die spektrale Dichte des Rauschens S_Φ bei einer Frequenz von 10 kHz als Funktion der Temperatur dargestellt.

Abb. 6.4 zeigt deutlich, dass die spektrale Dichte des Rauschens S_Φ zu tiefen Temperaturen hin proportional zu T abfällt, was nach Gl. 6.2 erwartet wird. Bei

³Durch Ausglühen kann die Leitfähigkeit um fast zwei Größenordnungen gesteigert werden. [Pob95]

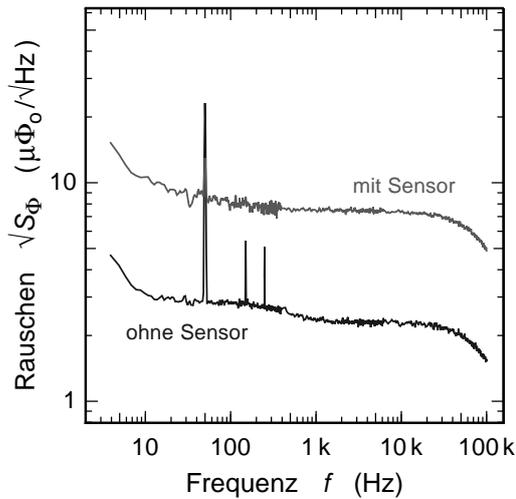


Abbildung 6.3:

Spektrale Dichte des Flussrauschens des SQUID-Magnetometers vor und nach der Bestückung mit einem AuEr-Sensor der Konzentration 300 ppm, aufgenommen bei einer Temperatur von $T = 4,2$ K.

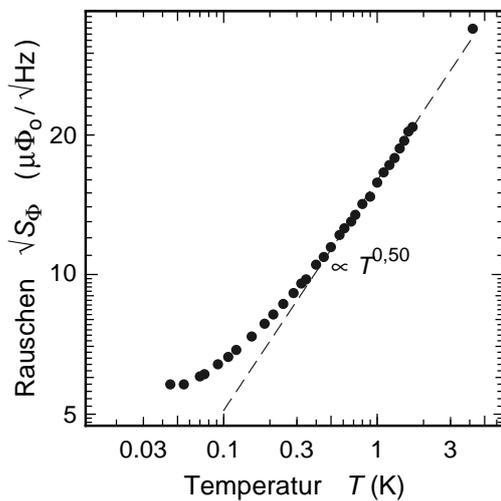


Abbildung 6.4:

Spektrale Dichte des Flussrauschens des SQUID-Magnetometers bei einer Frequenz von 10 kHz als Funktion der Temperatur. Im Abstand von ca. $2 \mu\text{m}$, parallel zur SQUID-Schleife befindet sich ein kleines Plättchen aus Gold (5N). Aufgrund der Verwendung von unterschiedlichen Aufbauten ist der Absolutwert des Rauschens *nicht unmittelbar* mit dem in Abb. 6.3 vergleichbar.

Temperaturen unterhalb von ca. 0,2 K erkennt man eine Abflachung, die durch den immer wichtiger werdenden Beitrag des Eigenrauschens des SQUIDs bedingt ist.

Mit dieser Messung wurde bestätigt, dass der Beitrag der Bewegung der Leitungselektronen des Goldes zum Gesamtrauschen S_Φ proportional zur Temperatur abnimmt. Das Ergebnis zeigt aber auch, dass dieser Beitrag bei Temperaturen $T < 100$ mK gegenüber dem SQUID-Eigenrauschen vernachlässigt werden kann. Die Bewegung der Leitungselektronen ist jedoch eine Rauschquelle, die bei höheren Temperaturen oder geringerem SQUID-Eigenrauschen für das *metallische* magnetische Kalorimeter von Bedeutung sein kann.

Als nächster Schritt soll nun das Rauschen des SQUID-Magnetometers bei tiefen Temperaturen betrachtet werden. Im Folgenden ist die SQUID-Schleife mit einem AuEr-Sensor (300 ppm) bestückt, und am Ort des Sensors wurde ein Magnetfeld von $B = 3,0$ mT angelegt, welches für die Detektion von Röntgenquanten üblicherweise verwendet wurde. Die in Abb. 6.5 dargestellte spektrale Dichte des Rau-

schen zeigt, gegenüber den Erwartungen der vorangestellten Diskussion, ein deutlich verändertes Bild. Für alle fünf gezeigten Temperaturen im Bereich unter 100 mK ist das weiße Rauschen des SQUID-Magnetometers gegenüber dem Wert in Abb. 6.4 erhöht. Zusätzlich beobachtet man ein ausgeprägtes, zu tiefen Frequenzen hin zunehmendes Rauschen, welches mit abnehmender Temperatur drastisch zunimmt. Die Ursache für die diskreten Linien im Frequenzspektrum sind zum einen elektromagnetische Störungen durch das Stromnetz (50 Hz und ganzzahlige Vielfache, auch oberhalb von 500 Hz sichtbar). Zum anderen sind niederfrequente Störfrequenzen (8 Hz, 16,1 Hz und 33,3 Hz) sichtbar, für deren Ursache mechanische Schwingungen (Gebäudeschwingungen, Trittschall, Vibrationen der Pumpen des Kryostaten) in Betracht kommen. Die genaue Herkunft der niederfrequenten Störungen konnte jedoch nicht ermittelt werden.

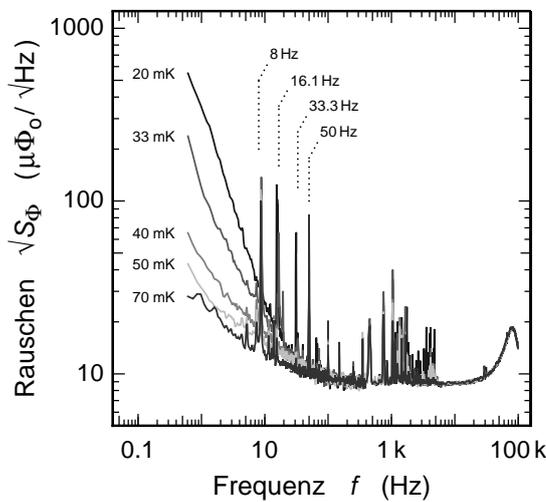


Abbildung 6.5:

Spektrale Dichte des Flussrauschens des SQUID-Magnetometers, bestückt mit einem AuEr-Sensor (300 ppm), als Funktion der Frequenz für fünf verschiedene Temperaturen im Bereich der Betriebstemperatur. Am Sensor und am SQUID-Chip lag ein Magnetfeld von $B = 3,0$ mT an.

Obwohl das Niveau des weißen Rauschens bedingt durch die deutlich geringere Temperatur reduziert sein sollte, beobachtet man eine spektrale Dichte, die mit dem in Abb. 6.3 gezeigten Wert (bei $T = 4,2$ K) vergleichbar ist. Der Grund hierfür ist das am Ort des Sensors angelegte Magnetfeld, welches für die Detektion von Röntgenquanten erforderlich ist. Aufgrund der Anordnung des SQUID-Chips innerhalb dieses Magnetfeldes sind jedoch auch die Josephson-Kontakte von magnetischem Fluss durchsetzt, was zu einer Erhöhung des weißen Eigenrauschens der Josephson-Kontakte führt. Deren Eigenrauschen steigt mit zunehmendem Magnetfeld monoton an. Bei $B = 3,0$ mT bedeutet dies, dass die spektrale Dichte des Rauschens oberhalb von $f > 100$ Hz und im Bereich der Betriebstemperatur des Kalorimeters, durch das Eigenrauschen des SQUIDs dominiert wird. Dies ist jedoch eine Eigenschaft des verwendeten SQUID-Chip-Typs in Verbindung mit dem gewählten mechanischen Aufbau und somit nicht von prinzipieller Bedeutung für das magnetische Kalorimeter.

Dagegen ist die temperaturabhängige Erhöhung des niederfrequenten Rauschanteils (bei Frequenzen unterhalb von 100 Hz) eine Eigenschaft des Sensors und nicht des SQUIDs. Dies hat eine Vergleichsmessung bei gleichen Betriebsparametern B und T gezeigt, bei der das Rauschen des SQUIDs mit *unbestückter* SQUID-Schleife be-

stimmt wurde. Eine mögliche Ursache für diesen interessanten, unerwarteten Verlauf der spektralen Dichte des Rauschens wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

Energiefluktuationen des Sensors

Der Sensor bildet zusammen mit dem Substrat des SQUID-Chips, dem Wärmebad und den einzelnen thermischen Kopplungen ein thermodynamisches System: Ein kanonisches Ensemble. Es lässt sich durch extensive und intensive Parameter oder auch 'generalisierte Kräfte' beschreiben, die im thermischen Gleichgewicht statistischen Fluktuationen unterliegen.

Eine Gleichung, welche speziell die Fluktuationen der Spannung in einem elektrischen System beschreibt, wurde bereits 1928 von Nyquist und Johnson abgeleitet, weshalb derartige Fluktuationen meist als Nyquist- oder Johnson-Rauschen bezeichnet werden.[Nyq28][Joh28] Diese Ableitung ist von universeller physikalischer Anwendbarkeit und wird im Fluktuations-Dissipations-Theorem dahingehend verallgemeinert, dass jedes dissipative System eine im thermischen Gleichgewicht fluktuierende, generalisierte Kraft besitzt.⁴

Im hier diskutierten Fall bedeutet dies, dass der Wärmehalt im Sensorsystem spontanen zeitlichen Fluktuationen unterliegt, deren Varianz von den beteiligten Wärmekapazitäten abhängig ist. Sie soll hier aus Gründen der Übersichtlichkeit für den Grenzfall angegeben werden, dass der Sensor die Gesamtwärmekapazität C_S besitzt, die sich aus dem Beitrag der magnetischen Momente $C_{S\text{pin}}$, dem unbekanntem System C_X und dem System der Leitungselektronen zusammensetzt. Der Sensor soll hier, wie in Abb. 6.6 dargestellt, über eine thermische Ankopplung G_{SB} direkt mit dem Wärmebad verbunden sein.

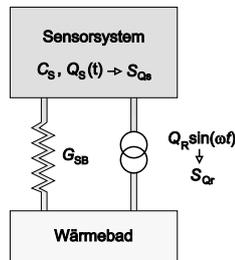


Abbildung 6.6:

Anordnung des thermodynamischen Systems in Verbindung mit der schematisch dargestellten Rauschquelle, welche die Ursache für die spontanen Fluktuationen des Wärmehaltes des Sensorsystems ist.

Zur Ableitung der spektralen Verteilung der Fluktuationen wurde zusätzlich eine 'Rauschquelle' zwischen dem Wärmebad und dem Sensorsystem eingefügt, die zunächst eine Oszillation mit fester Kreisfrequenz ω und der Amplitude Q_R ausführen soll. Die den Wärmefluss beschreibende lineare Differenzialgleichung nimmt die Form

$$\frac{\partial}{\partial t} Q_S(t) = -\frac{Q_S(t)}{C_S} G_{SB} + Q_R \sin \omega t \quad (6.3)$$

an. Sie kann unter der Randbedingung $Q_S(t=0) = 0$ gelöst werden, und es folgt für die Amplitude der Oszillation des Wärmehaltes im Sensorsystem Q_S im Grenzfall

⁴Eine Anwendung dieses Theorems in Bezug auf verschiedene physikalische Gesetzmäßigkeiten findet man z.B. Callen *et al.*[Cal51]

$t \rightarrow \infty$

$$Q_S^2(\omega) = \frac{C_S^2}{\omega^2 C_S^2 + G_{SB}^2} Q_R^2. \quad (6.4)$$

Ersetzt man nun Q_R^2 durch die bekannte, frequenzunabhängige spektrale Rauschdichte S_{Q_r} und Q_S^2 durch die gesuchte Rauschdichte S_{Q_s} , d.h.

$$\begin{aligned} Q_R^2 &\rightarrow S_{Q_r} = 4 k_B T^2 G_{SB} \\ Q_S^2(\omega) &\rightarrow S_{Q_s}(\omega) \quad , \end{aligned} \quad (6.5)$$

so erhält man die spektrale Dichte der Fluktuationen des Sensorwärmehalts

$$S_{Q_s}(\omega) = 4 k_B T^2 \frac{G_{SB}}{\omega^2 + \left(\frac{G_{SB}}{C_S}\right)^2} \quad \text{und mit } \omega = 2\pi f \quad (6.6)$$

$$\int_0^\infty S_{Q_s}(f) df = k_B T^2 C_S. \quad (6.7)$$

Gleichung 6.6 zeigt, dass die spektrale Dichte S_{Q_s} bei tiefen Frequenzen einen frequenzunabhängigen Grenzwert erreicht und oberhalb der 'Grenzfrequenz'

$$\omega_g = \tau^{-1} = \frac{G_{SB}}{C_S}, \quad (6.8)$$

der inversen Zeitkonstante τ^{-1} für die Relaxation der Energie zwischen Sensorsystem und Wärmebad, proportional zu ω^{-2} abfällt.

Auf gleiche Weise lässt sich die spektrale Dichte der Fluktuationen ableiten, wenn die thermische Kopplung des Sensors an das Wärmebad über das Substrat des SQUID-Chips stattfindet. Die Ableitung verläuft analog zu dem oben beschriebenen Weg. Der Ausdruck für die spektrale Dichte ist in diesem Fall jedoch deutlich komplexer, weshalb er hier nicht angegeben werden soll. Neben der Wärmekapazität des Sensors wird nun auch die des Substrats des SQUID-Chips, sowie die einzelnen thermischen Kopplungskonstanten für den Wärmetransport zwischen den Systemen benötigt. Das Ergebnis der Bestimmung dieser Größen ist in Abschnitt 7.1.1 dargestellt.

meinhalts berechnet werden. Für ein Magnetfeld von $B = 3,0 \text{ mT}$ sind die Ergebnisse für das daraus resultierende Flussrauschen in Abb. 6.7 für fünf verschiedene Sensortemperaturen als Funktion der Frequenz dargestellt. Offenbar kann mit Hilfe des Modells des fluktuierenden Sensorwärmehaltes tatsächlich eine Zunahme des Flussrauschens zu kleinen Frequenzen und tiefen Temperaturen hin beschrieben werden. Die Werte für die spektrale Dichte des Rauschens sind jedoch um mehr als zwei Größenordnungen kleiner als die experimentell bestimmten Werte (vergl. Abb. 6.5). Die Energiefluktuationen des Sensorsystems, d.h. des Systems der magnetischen Momente der Er^{3+} -Ionen, ist hier somit als dominanter Beitrag unwahrscheinlich.

Es ist denkbar, dass der Ursprung dieses Rauschbeitrages mit der Anwesenheit des zusätzlichen Wärmereservoirs mit der Wärmekapazität C_X verknüpft ist. Da die Natur dieses Wärmereservoirs und damit auch dessen Kopplungsmechanismus noch

Mit den dort beschriebenen Werten für die Wärmekapazitäten und thermischen Kopplungskonstanten kann die spektrale Dichte der Fluktuationen des Sensorwär-

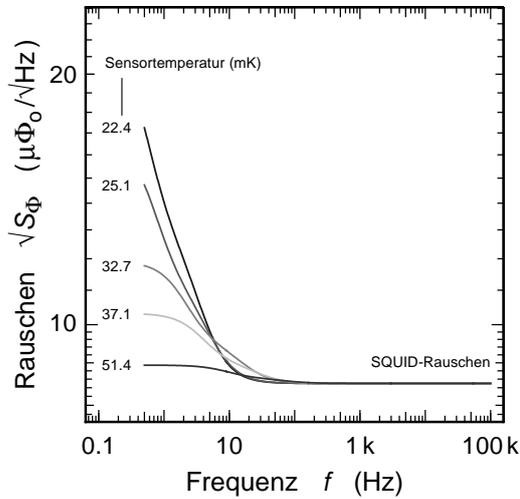


Abbildung 6.7:

Spektrale Dichte des Flussrauschens, aufgrund der Fluktuationen des Sensorwärmehalts für fünf Temperaturen als Funktion der Frequenz für ein Magnetfeld von $B = 3,0 \text{ mT}$. Es wurde mit dem Eigenrauschen des SQUIDs überlagert, was einen Vergleich mit Abb. 6.5 vereinfacht.

unbekannt ist, sind zur Klärung des Ursprungs dieses Rauschbeitrages weitere Experimente erforderlich, die aus Zeitgründen im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht durchgeführt werden konnten.

7. Betrieb des Kalorimeters mit ^{55}Fe -Quelle

Einer der Schwerpunkte dieser Arbeit war die Optimierung des magnetischen Kalorimeters hinsichtlich der erreichbaren Energieauflösung bei der Bestimmung von Röntgenspektren im Energiebereich bis ca. 10 keV. Im Zuge dieser Optimierung soll zunächst die tatsächliche Pulsform des in dieser Arbeit beschriebenen magnetischen Kalorimeters diskutiert werden. Darauf aufbauend kann zusammen mit dem bereits charakterisierten Rauschen das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis errechnet und aus dessen Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit die optimalen Betriebsparameter bestimmt werden.

Das erreichte Auflösungsvermögen des in dieser Arbeit vorgestellten magnetischen Kalorimeters wird anhand des Röntgenspektrums von Mangan gezeigt und die ermittelte Linienform detailliert diskutiert und mit Auflösungen von konkurrierenden Konzepten verglichen.

7.1 Optimale Betriebsparameter

Zunächst soll die Bestimmung der optimalen Betriebsparameter B_{opt} und T_{opt} beschrieben werden. Da diese jeweils vom individuellen Aufbau des Kalorimeters abhängen, soll die Vorgehensweise an dieser Stelle nur am Beispiel jenes Aufbaus erläutert werden, dessen AuEr-Sensor durch das Einfügen einer PE-Folie zusätzlich vom Wärmebad thermisch isoliert wurde (vergl. Abb. 4.11). In diesem Aufbau wurde auf die Verwendung eines Absorbers verzichtet.

7.1.1 Tatsächliche Pulsform

Die Pulsform des in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Kalorimeters ist gegenüber der zuvor beschriebenen *idealen* Pulsform verändert. Der Grund hierfür ist das Vorhandensein des Substrates des SQUID-Chips, welches ein intermediäres Wärmereservoir zwischen dem Sensor und dem Wärmebad bildet. Die Anordnung der einzelnen thermischen Systeme ist in Abb. 7.1 schematisch dargestellt.

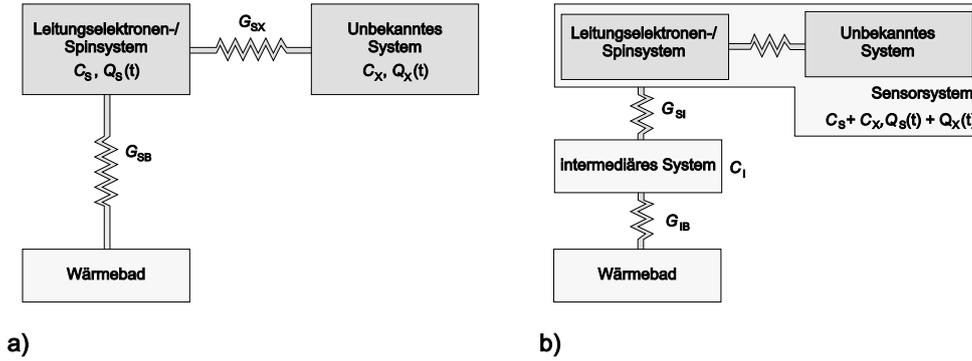


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung der thermodynamischen Systeme

- in der in Abschnitt 5.2.2 beschriebenen Anordnung, aus welcher die ideale Pulsform resultiert, und zum Vergleich
- in einem Aufbau mit intermediärem Reservoir. Hier sollen das Leitungselektronen-/Spin-System und das unbekannte System als stark gekoppelt betrachtet werden (siehe Text).

Gegenüber dem zuvor aufgestellten thermodynamischen Modell (Abschnitt 5.2.2) ist eine exakte Beschreibung des Wärmeflusses in dem in Abb. 7.1 b) dargestellten System deutlich komplexer, da hierzu ein System aus drei gekoppelten Differentialgleichungen gelöst werden muss. Die Lösung ist eine Erweiterung von Gl. 5.1 für die gilt

$$\Phi(t) = \Phi_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + \Phi_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + \Phi_3 \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right). \quad (7.1)$$

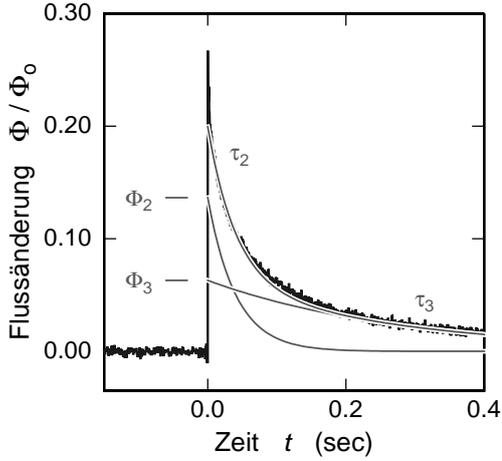
Die Anwesenheit des ersten Pulshöhenanteils Φ_1 kann bei der Bestimmung des Signal-zu-Rauschen-Verhältnisses aufgrund der kleinen Zeitkonstante τ_1 gegenüber den verbleibenden Pulshöhenanteilen Φ_2 und Φ_3 vernachlässigt werden. Die zeitliche Verlauf des Kalorimetersignals kann zu langen Zeiten ($t \gg \tau_1$) in guter Näherung durch

$$\Phi(t) \approx \Phi_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) + \Phi_3 \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right) \quad (7.2)$$

beschrieben werden. Diese Näherung ist gleichbedeutend mit dem Zusammenfassen der Systeme der Leitungselektronen, der magnetischen Momente und des unbekanntes Wärmereservoirs zu einem intrinsisch stark gekoppelten Gesamtsystem. Dieses Gesamtsystem wird im Folgenden als Sensorsystem bezeichnet. Die aus dieser Näherung folgende Anpassung der Pulsform ist in Abb. 7.1 dargestellt. Wie zu erwarten war, wird in der verwendeten Näherung der Pulshöhenanteil Φ_1 und dessen Zeitkonstante τ_1 , d.h. die Spitzenform des Pulses, nicht korrekt wiedergegeben. Der zeitliche Verlaufsform nach dem Abklingen der ersten Zeitkonstante (d.h. für $t > 1$ ms) wird dagegen in guter Näherung wiedergegeben.¹

Aus der Kenntnis von Φ_2 , Φ_3 und τ_2 und τ_3 für verschiedene Temperaturen T und Magnetfelder B können nun die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit der im thermodynamischen Modell verwendeten Wärmekapazität C_I und der einzelnen

¹Die geringfügige Abweichung im Zeitbereich zwischen 50 ms und 150 ms deutet darauf hin, dass die Beschreibung mit dem vorgestellten thermodynamischen Modell jedoch nicht perfekt ist.

**Abbildung 7.2:**

Die tatsächliche zeitliche Verlauf der Flussänderung bei der Absorption eines Röntgenquants der Energie $E_\gamma = 5,9 \text{ keV}$ im Kalorimeter. Der AuEr-Sensor (300 ppm) war durch eine PE-Folie thermisch vom Wärmebad isoliert.

Mit eingezeichnet sind die zeitlichen Verläufe die aus den Pulshöhenanteile Φ_2 und Φ_3 und den Zeitkonstanten τ_2 und τ_3 resultieren.

($T = 25,1 \text{ mK}$, $B = 3,0 \text{ mT}$)

thermischen Kopplungskonstanten G_{SI} , G_{IB} .² Die Vorgehensweise ist analog zu dem in Abschnitt 5.2.2 vorgestellten Verfahren. Auf eine Diskussion der einzelnen Feld- und Temperaturabhängigkeiten soll an dieser Stelle verzichtet werden. Exemplarisch sollen folgende typische Größen genannt werden: Bei einem Magnetfeld $B = 3,0 \text{ mT}$ und einer Temperatur $T = 22,4 \text{ mK}$ folgen für das betrachtete Kalorimeter, dessen AuEr-Sensor (300 ppm) durch die PE-Folie thermisch vom Wärmebad isoliert wurde, die Werte

$$\begin{aligned}
 C_S &= 1,6 \cdot 10^{-12} \text{ J/K} , & C_X &= 0,38 \cdot 10^{-12} \text{ J/K} \\
 & & \downarrow & \\
 G_{\text{SI}} &= 1,2 \cdot 10^{-10} \text{ J/(K s)} , & G_{\text{IB}} &= 0,85 \cdot 10^{-11} \text{ J/(K s)} \quad \text{und} & (7.3) \\
 & & C_I &= 1,6 \cdot 10^{-12} \text{ J/K} .
 \end{aligned}$$

Diese Berechnung zeigt, dass die Wärmekapazität des intermediären Systems mit der Wärmekapazität des AuEr-Sensors vergleichbar ist. Die Wärmekapazität des intermediären Systems ist jedoch um einen ca. Faktor 50 größer als der Wert der für reines Silizium nach dem Debye-Modell zu erwarten ist. Dieser erhöhte Wert ist wahrscheinlich auf eine Dotierung des Silizium-Substrates, die Aufgedampften SQUID-Strukturen, die PE-Folie und das Silikonfett zurückzuführen.

Insgesamt kann gesagt werden, dass der zeitliche Verlauf der Flussänderung im SQUID bei der Absorption eines Röntgenquants mit guter Genauigkeit durch das vorgestellte thermodynamische Modell wiedergegeben wird, weshalb die Pulsform für $t > 1 \text{ ms}$ durch die Größen Φ_2 , Φ_3 , τ_2 und τ_3 parametrisiert werden kann.

7.1.2 Signal-zu-Rauschen-Verhältnis

Mit der Kenntnis der Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit der Pulsform und des Rauschens kann das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis berechnet werden, um daraus die optimalen Betriebsparameter B_{opt} und T_{opt} zu bestimmen.

²Die Größen C_I , G_{SI} und G_{IB} sind in Abb. 7.1 b) eingezeichnet.

In seiner bisherigen, einfachen Definition ist das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis jedoch für diese Bestimmung unzureichend (vergl. Abschnitt 4). Das ist darin begründet, dass die einzelnen Frequenzintervalle des Rauschens unterschiedlichen Einfluss auf die Genauigkeit der Pulshöhenbestimmung ausüben (vergl. Abb. 4.20).

Eine erweiterte Definition des Signal-zu-Rauschen-Verhältnisses sollte daher beides, die Pulsform und das Frequenzspektrum des Rauschens berücksichtigen. Als geeignet erweist sich in diesem Zusammenhang die bereits diskutierte 'elektronische Linienbreite', die in Abschnitt 4.5.3 eingeführt wurde. Sie gibt die minimal erreichbare Linienbreite in relativen Einheiten zur Höhe des verwendeten Musterpulses an. Sie ist, wie bereits beschrieben wurde, von der Pulsform, dem Frequenzspektrum des Rauschens, aber auch von den Datenaufzeichnungsparametern abhängig. Das so definierte Signal-zu-Rauschen-Verhältnis kann mit Hilfe des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Computerprogramms 'DAQfast-Synthesizer' vor der eigentlichen Datenaufzeichnung berechnet und optimiert werden. Zusätzlich kann die elektronische Linienbreite während der Datenaufzeichnung mit Hilfe der Online-Auswertung bestimmt werden.

Sowohl die Pulsform und -höhe, als auch die spektrale Verteilung des Rauschens sind in den vorangegangenen Abschnitten experimentell bestimmt worden. Das Ergebnis der daraus berechneten elektronischen Linienbreite ist in Abb. 7.3 als Funktion der Temperatur T für zwei Magnetfelder $B = 2,0\text{ mT}$ und $3,0\text{ mT}$ dargestellt. Man er-

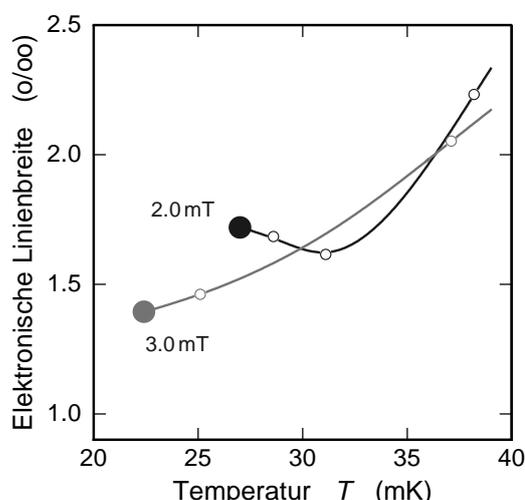


Abbildung 7.3:

Berechnete elektronische Linienbreite des Kalorimeters als Funktion der Temperatur für zwei Magnetfelder. Die Linien verbinden die Datenpunkte, die ausgefüllten Kreise kennzeichnen die für das Magnetfeld minimal erreichbare Sensortemperatur.

(Der Sensor ist eine AuEr-Probe (300 ppm), der durch die PE-Folie thermisch vom Wärmebad isoliert wurde.)

kennt, dass die elektronische Linienbreite für $B = 2,0\text{ mT}$ bei $T \approx 32\text{ mK}$ ein Minimum durchläuft, wogegen für $B = 3,0\text{ mT}$ ein mögliches Minimum selbst für die tiefste erreichbare Sensortemperatur von $T = 22,4\text{ mK}$ nicht erreicht wird.³

Insgesamt zeigt das Ergebnis dieser Berechnung, dass die minimale elektronische Linienbreite von $1,4\text{ ‰}$ und daher das maximale Signal-zu-Rauschen-Verhältnis für die tiefste erreichbare Temperatur $T_{\text{opt}} = 22,4\text{ mK}$ und das Magnetfeld $B_{\text{opt}} = 3,0\text{ mT}$ erreicht wird. Die berechnete elektronische Breite von $1,4\text{ ‰}$ ent-

³Die tiefste erreichbare Sensortemperatur wird durch den benötigten Bias-Strom zum Betrieb des SQUIDS im äußeren Magnetfeld bestimmt.

spricht einer FWHM-Energieauflösung von ca. 8,3 eV für eine Energie $E_\gamma = 5,9$ keV.

Anzumerken bleibt, dass das Magnetfeld $B = 3,0$ mT sehr nahe dem für den Betrieb des SQUID (Chip 'SSC003', SQUID 'KMAG10-50') maximal möglichen Magnetfeld von ca. 3,5 mT, liegt und die minimal erreichbare Temperatur durch den benötigten Bias-Strom von $I_B = 4,0 \mu\text{A}$ bestimmt wird. Daher ist der berechnete Wert für die minimale elektronische Breite durch die hier vorgestellte Realisierung des magnetischen Kalorimeters bestimmt. Dieser Wert stellt daher keine fundamentale Grenze für die erreichbare elektronische Linienbreite des magnetischen Kalorimeters dar.

Damit sind die optimalen Betriebsparameter T_{opt} und B_{opt} bestimmt, unter denen das hier diskutierte magnetische Kalorimeter die maximale Auflösung bei der Bestimmung von Energiespektren von Röntgenquellen erreicht. Das soll im folgenden Kapitel anhand des Röntgenspektrums der Testquelle demonstriert werden.

7.2 Röntgenspektrum von Mangan

Zur Bestimmung des Auflösungsvermögens des Kalorimeters wurde ein ^{55}Fe -Präparat eingesetzt. Diese Quelle emittiert die charakteristische Röntgenstrahlung von Mangan, deren intensivitätsstärksten Linien die K_α - und die K_β -Linie mit den Energien 5,89 keV und 6,48 keV sind (vergl. Abschnitt 4.3.5).

Die natürliche Linienform dieser Röntgenübergänge ist von Hölzer *et al.* mit einer wellenlängen-dispersiven Messmethode mit einer Auflösung von ca. 0,25 eV bestimmt worden. Eine Abbildung der Feinstruktur der Mn- K_α -Linie ist in Abb. 7.4 dargestellt. Die Feinstrukturaufspaltung dieser Linie beträgt ca. 12 eV, die FWHM-Breite der Einzellinien ca. 2,5 eV.

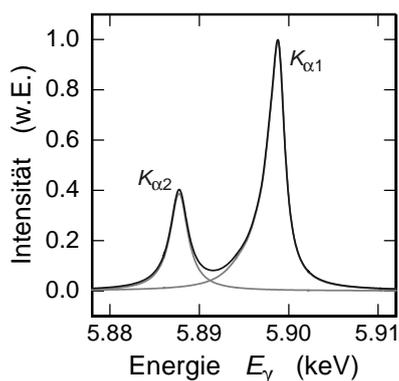


Abbildung 7.4:

Feinstruktur der natürlichen Linienform des K_α -Röntgenübergangs von Mangan. Mit eingezeichnet sind die relativen Beiträge der $K_{\alpha 1}$ - und der $K_{\alpha 2}$ -Linie. [Höl197]

7.2.1 Betrieb ohne Absorber

Zur Bestimmung des Auflösungsvermögens wurde das Kalorimeter mit der ^{55}Fe -Röntgenquelle bestrahlt und die Einzelereignisse aufgezeichnet. Die ermittelte Pulshöhenverteilung wurde kalibriert, indem die relative Pulshöhe mit einem Skalierungs-

faktor multipliziert wurde. Dieser wurde so gewählt, dass der Linie mit höchster Intensität die Energie der $\text{Mn-}K_{\alpha}$ zugeordnet wurde. Das Ergebnis des so kalibrierten Röntgenspektrums von Mangan ist in Abb. 7.5 dargestellt. In dem Bild ist das volle

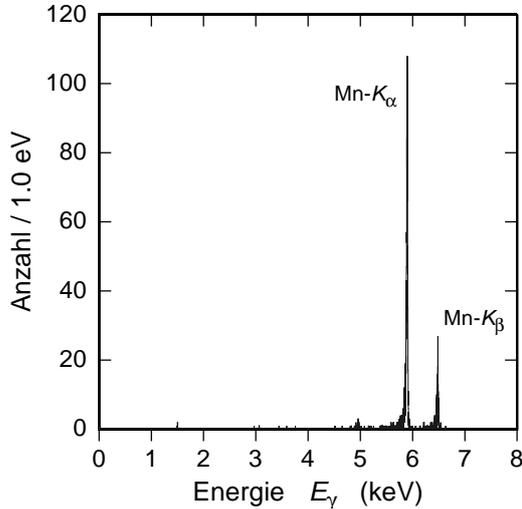


Abbildung 7.5:

Röntgen-Energiespektrum von Mangan. Eingezeichnet sind die identifizierten Energien $\text{Mn-}K_{\alpha}$ und $\text{Mn-}K_{\beta}$. ($T = 30 \text{ mK}$, $B = 3,0 \text{ mT}$)

Röntgenspektrum der Quelle sichtbar. Deutlich getrennt erkennt man die $\text{Mn-}K_{\alpha}$ - von der $\text{Mn-}K_{\beta}$ -Linie. Neben diesen beiden Linien ist im gezeigten Röntgenspektrum ein Untergrund erkennbar, auf dessen Ursprung später noch eingegangen wird.

Die Rate der Absorptionereignisse, mit der dieses Energiespektrum aufgenommen wurde, betrug ca. $0,16 \text{ s}^{-1}$. Dieser Wert wurde klein gewählt, da die Thermalisierungszeit der Pulse mit 400 ms vergleichsweise lang war. Diese Zeitkonstante wurde durch das Einfügen der PE-Isolationsfolie bewusst vergrößert, um auf diese Weise das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu verbessern.

Bei der Aufbereitung der Einzelereignisse wurden solche Pulse verworfen, deren Absorption in der PE-Folie stattfanden. Diese Ereignisse konnten aufgrund der besonderen Pulsform identifiziert werden. Ein Vergleich zwischen den verschiedenen Pulsformen ist in Abb. 7.6 dargestellt. Der Musterpuls, mit dem die Form der Ein-

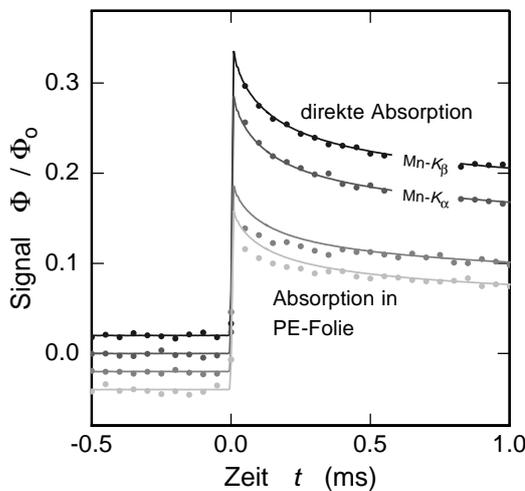


Abbildung 7.6:

Vergleich zwischen Formen von Einzelereignissen. Dargestellt sind sowohl Ereignisse, die im Sensor als auch solche, die in der PE-Folie absorbiert wurden. Die durchgezogenen Linien entsprechen der Anpassung eines Musterpulses, der in diesem Fall aus einer Vielzahl von $\text{Mn-}K_{\alpha}$ -Ereignissen ermittelt wurde. ($T = 30 \text{ mK}$, $B = 3,0 \text{ mT}$, Sampling-Rate reduziert: 20 kHz)

zelereignisse verglichen wird, wurde durch Mittelung aus einer Vielzahl von Mn- K_α -Ereignissen gewonnen. Man erkennt, dass die Form dieses Musterpulses mit denen übereinstimmt, deren Absorption direkt im Sensor stattgefunden hat. Die leichte Streuung der einzelnen Samples ist auf Rauschen zurückzuführen, das dem wahren Signal überlagert ist. Trotz dieser leichten Streuung kann eine Pulshöhenbestimmung mit großer Genauigkeit durchgeführt werden. Jene Ereignisse, deren Absorption jedoch in der PE-Folie stattgefunden hatte, besaßen eine gegenüber dem Musterpuls veränderte Pulsform (in der Abbildung im Bereich $0 < t < 0,5$ ms).

Die instrumentelle Auflösung wurde im nächsten Schritt anhand der Linienform der Mn- K_α -Linie bestimmt. Die experimentell bestimmte Form dieser Linie ist in Abb. 7.7 vergrößert dargestellt. Dieser Linienform ist eine berechnete Kurve über-

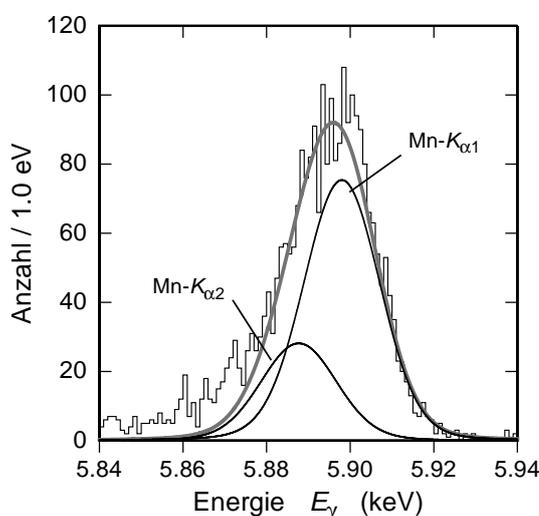


Abbildung 7.7:

Experimentell bestimmte Linienform der Mn- K_α -Linie. Zusätzlich eingezeichnet ist das Ergebnis der Faltung der natürlichen mit der instrumentellen Linienform der FWHM-Breite von 20 eV, sowie die entsprechenden Einzelkomponenten der $K_{\alpha 1}$ - und $K_{\alpha 2}$ -Linie. ($T = 30$ mK, $B = 3,0$ mT)

lagert, die aus der Faltung der natürlichen Linienform und einer Gauß-Verteilung resultiert, die im Folgenden als *instrumentelle Linienform* diese Aufbau bezeichnet wird. Die beste Übereinstimmung zwischen dieser berechneten Kurve und der experimentellen Linienform wird für instrumentelle Linienform der FWHM-Breite von 20 eV erzielt. Bei einer Röntgenenergie von $E_\gamma \approx 5,89$ keV entspricht dies einer instrumentellen Auflösung von 3,4 ‰.

Die hier dargestellte Energieauflösung von 20 eV bei einer Energie von $E_\gamma = 5,9$ keV ist bereits um einen Faktor 6 größer als die Auflösung, die mit den derzeit hochauflösenden, kommerziell erhältlichen Halbleiterdetektoren (z.B. Si(Li)-Halbleiterdetektoren) erreicht werden kann!

7.2.2 Betrieb mit zusätzlichem Absorber

Der Betrieb des Kalorimeters mit einem zusätzlichen Absorber birgt verschiedene Vor- und Nachteile, die bereits in Abschnitt 4.3.3 diskutiert wurden. Die Verwendung des Goldabsorbers mit den Abmessungen $100 \times 100 \times 8 \mu\text{m}^3$ bedeutete in diesem Fall zunächst eine Vergrößerung der Fläche für die Absorption der Röntgenquanten und

dadurch bedingt eine Erhöhung der Ereignisrate bei der gegebenen Aktivität der Testquelle. Die Verwendung des Absorbers verursachte jedoch auch eine Änderung der Pulsform.

Diese Veränderung wies zwei Merkmale auf. Zum einen war die Zeitkonstante für den Signalanstieg auf einen Wert von $\tau_0 \approx 60 \mu\text{s}$ reduziert. Diese Eigenschaft war in der begrenzten thermischen Leitfähigkeit der Schweissverbindung zwischen Absorber und Sensor begründet. Zum anderen war die Pulshöhe um ca. 10 % reduziert, was durch die zusätzliche Wärmekapazität des Absorbers bedingt war. Auf die Verwendung der PE-Isolationsfolie wurde verzichtet, so dass die Thermalisierungszeit 15 ms betrug. Diese Zeitkonstante ist in diesem Fall ausschließlich durch die begrenzte thermische Leitfähigkeit des Silizium-Substrates des SQUID-Chips bzw. die involvierten thermischen Grenzflächenwiderstände limitiert.

Die Form eines typischen Pulses ist in Abb. 7.8 dargestellt. Anhand des eingesetzten

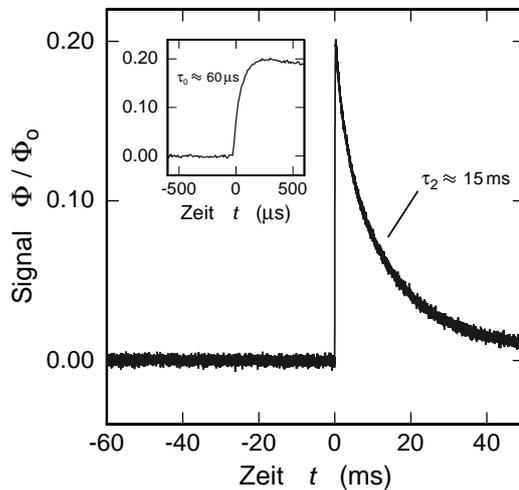


Abbildung 7.8:

Typische Pulsform bei der Absorption eines Röntgenquants der Energie $E_\gamma = 5,89 \text{ keV}$ im Absorber. Das eingefügte Bild stellt eine Ausschnittsvergrößerung des Signalanstieges dar. ($T = 35 \text{ mK}$, $B = 3,0 \text{ mT}$)

kleinen Bildes erkennt man die vergrößerte Zeitkonstante des Signalanstiegs. Abbildung 7.8 zeigt auch, dass die Zeitkonstante des Signalanstiegs noch immer um mehr als zwei Größenordnungen kleiner als die des Signalabfalls ist.

Das Ergebnis der Bestimmung des Röntgenspektrums von Mangan mit diesem Aufbau ist in Abb. 7.9 a) dargestellt. In diesem Spektrum sind die beiden Röntgenlinien K_α und K_β im Vergleich zu Abb. 7.5 noch deutlicher voneinander getrennt. Zusätzlich erkennt man eine Reduktion des Untergrundes.

In Abb. 7.9 b) ist die experimentell bestimmte Linienform der Mn- K_α -Linie dargestellt. Diese Linie zeigt eine deutlich asymmetrische Form, welche auf die Feinstruktur der Mn- K_α -Linie zurückzuführen ist. Das unterstreicht die durchgezogene Kurve, welche aus einer Faltung der natürlichen Linienform mit einer Gauß-Verteilung, der instrumentellen Linienform, hervorgeht. Die beste Übereinstimmung zwischen dieser Faltung und der experimentell bestimmten Pulshöhenverteilung konnte mit einer instrumentellen Linienform der FWHM-Breite von 13 eV erreicht werden. Dieser Wert entspricht einer instrumentellen Auflösung von 2,2 ‰ (bei $E_\gamma = 5,9 \text{ keV}$). Mit die-

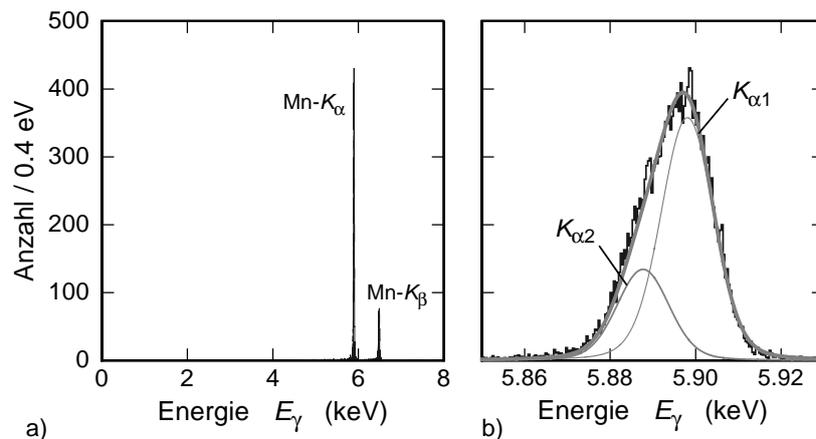


Abbildung 7.9: Röntgen-Energiespektrum von Mangan, aufgenommen mit dem beschriebenen magnetischen Kalorimeter, dessen Sensor mit einem Goldabsorber verschweißt war. ($T = 35$ mK, $B = 3,0$ mT)

- Das gesamte Röntgenenergiespektrum von Mangan, und
- die experimentell bestimmte Linienform der Mn- K_α -Linie. Zusätzlich eingezeichnet ist das Ergebnis der Faltung der natürlichen Linienform mit einer Gauß-Verteilung der FWHM-Breite von 13 eV, sowie die entsprechenden Beiträge der $K_{\alpha 1}$ - und $K_{\alpha 2}$ -Linie.

sem Aufbau konnte daher die derzeit höchste Energieauflösung eines magnetischen Kalorimeters bei der Energie $E_\gamma = 5,9$ keV erreicht werden!

Dieses Ergebnis ist eine Steigerung des Auflösungsvermögens des Kalorimeters im Vergleich zu dem zuvor beschriebenen Ergebnis. Diese Steigerung war möglich, obwohl die Thermalisierungszeit der Pulse deutlich reduziert und zusätzlich ein Goldabsorber eingesetzt wurde.

Aufgrund der Größe des verwendeten Absorbers konnte der Strahlengang des Kalorimeters mit Hilfe des Kollimators präzise auf die Absorberfläche ausgerichtet werden. Da der Absorber zusätzlich eine hohe Quanteneffizienz von nahezu 100 % (bei $E_\gamma \approx 6$ keV) besaß, war die Anzahl der Ereignisse, deren Absorption im Siliziumsubstrat des SQUID-Chips stattfanden auf eine geringe Anzahl von ca. 2 % begrenzt.

Das gezeigte Energiespektrum mit einer Zahl von 20200 Ereignissen innerhalb der K_α -Linie wurde mit einer Ereignisrate von ca. 4 s^{-1} innerhalb 1,5 Stunden Messzeit bestimmt. Die Pulshöhenbestimmung fand in Echtzeit statt, das ermittelte Energiespektrum wurde jedoch einer Nachbereitung unterzogen: Die Pulshöhen wurden in ihrem zeitlichen Verlauf hinsichtlich einer geringfügigen Drift der Arbeitstemperatur korrigiert. Diese Korrektur erwies sich als notwendig, da für die Regelung der Arbeitstemperatur verwendete Temperaturregler nicht einwandfrei arbeitete. Im Unterschied zu der in Abschnitt 4.4 vorgestellten Funktionsweise, wurde in diesem Fall die Temperatur der zweiten Stufe nicht mit dem Kalorimeter selbst, sondern mit einem zusätzlichen Thermometer bestimmt. Dessen Aufbau ist mit dem in Abschnitt 4.6 beschriebenen Aufbau zu Bestimmung der Magnetisierung vergleichbar.

In der Nachbereitung eingeschlossen war zusätzlich eine genaue Analyse der Qualität der Pulshöhenanpassung jedes einzelnen Ereignisses, wodurch solche, deren Absorption im Siliziumsubstrat des SQUID-Chips stattfand, verworfen wurden. Aufgrund desselben Kriteriums wurden auch sogenannte Pile-up-Ereignisse⁴ verworfen.

7.3 Analyse der Linienverbreiterung

Es soll nun die in den beiden Experimenten erreichte instrumentelle Auflösung von 3,4 ‰ bzw. 2,2 ‰ bei der Energie von $E_\gamma = 5,89\text{ keV}$ analysiert werden. Dazu wird zunächst die sogenannte 'elektronische Linienform' betrachtet (vergl. Abschnitt 4.5.3, 'Rauschen des Ruhesignals und Linienbreite'). Sie wurde mit Hilfe des aufgezeichneten Kalorimeter-Ruhesignals bestimmt, welches mit dem Musterpuls überlagert der Pulshöhenanalyse zugeführt wird. Das Ergebnis beschreibt das zur Datenaufnahmezeit herrschende Signal-zu-Rauschen-Verhältnis, und es spiegelt die minimale Linienbreite wieder, die unter den gegebenen Bedingungen (Pulsform und -höhe, spektrale Verteilung des Rauschens des Ruhesignals und Datenaufnahmeparameter) erreicht werden konnte.

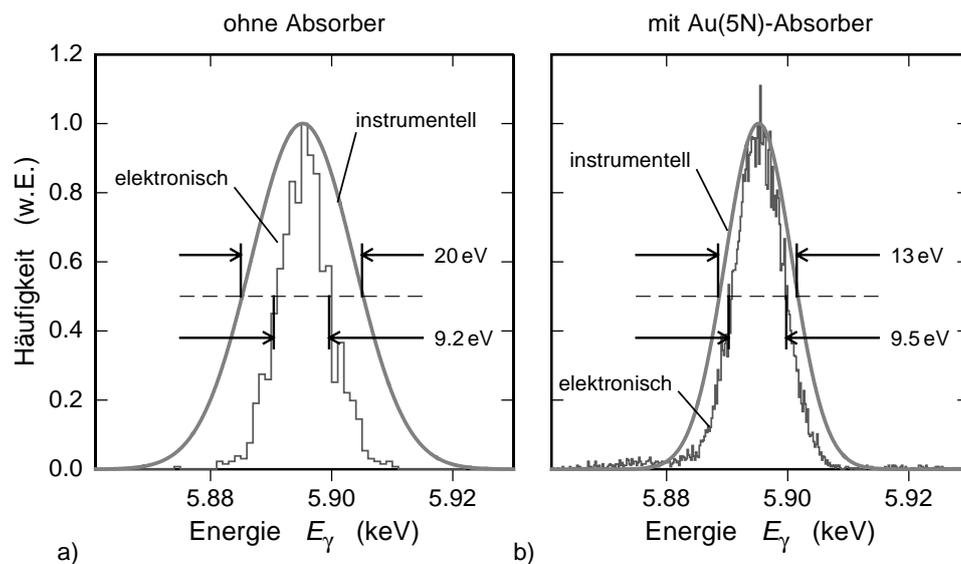


Abbildung 7.10: Vergleich der instrumentellen und elektronischen Linienformen der $\text{Mn-}K_\alpha$ -Linien der zuvor diskutierten Röntgenspektren für die zwei unterschiedlichen Aufbauten
a) ohne zusätzlichen Absorber, und
b) mit $\text{Au}(5\text{N})$ -Absorber.

In den Abbildungen 7.10 a) und b) sind diese zusammen mit den instrumentellen Linienformen der beiden oben vorgestellten Experimente dargestellt. Diese instru-

⁴Pile-up <engl.> ((auf)stapeln, auftürmen, hier: die Absorption zweier oder mehrerer Röntgenquanten innerhalb des betrachteten Zeitfensters der Datenaufnahme).

mentellen Linienformen wurden zuvor als die gaußförmigen Verteilungen bestimmt, welche nach der Faltung mit der natürlichen Linienform die jeweils beste Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Linienformen ergeben haben. Die Breite der instrumentellen Linienformen geben daher die Linienverbreiterung durch den Einfluss des Instruments wieder.

Ganz offensichtlich ist die instrumentelle Linienbreite in beiden Abbildungen größer als die elektronische Linienbreite. Die FWHM-Werte für den Aufbau *ohne* Absorber sind 20 eV im Vergleich zu 9,2 eV bzw. 13 eV im Vergleich zu 9,5 eV für den Aufbau *mit* Au(5N)-Absorber. Die notwendige Schlussfolgerung ist, dass in beiden Fällen ein weiterer Mechanismus existiert hat, der zu einer zusätzlichen Linienverbreiterung geführt hat. Unter der Annahme, dass dieser Mechanismus für sich eine gaußförmige Linienform erzeugen würde, dürfen die FWHM-Breiten der einzelnen gaußschen Verteilungen quadratisch addiert bzw. subtrahiert werden.

Unter dieser Annahme folgt, dass die Linienform, die mit dem Aufbau ohne Absorber bestimmt wurde, eine zusätzliche Verbreiterung von 17,8 eV (FWHM-Wert) erfahren hat. Für den Aufbau mit Absorber beträgt diese 8,9 eV. Die Ursache für eine solche Verbreiterung kann sowohl in einer Variation der Pulshöhe als auch der Pulsform begründet sein. Im letzteren Fall ist die genaue Bestimmung der Pulshöhe durch eine Höhenanpassung an den verwendeten Musterpuls nur ungenau möglich, und diese Ungenauigkeit führt in der Regel zu einer Verbreiterung der Linienform.

7.3.1 Berechnung der Sample-Standardabweichung

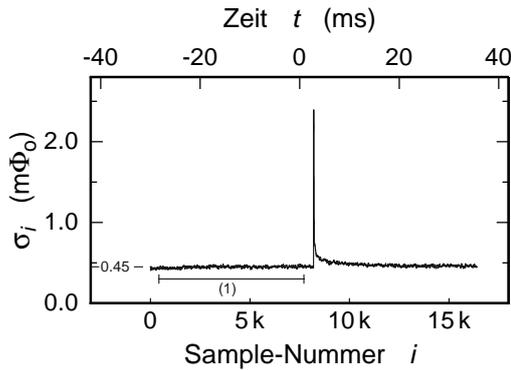
Um die Ursache der Verbreiterung feststellen zu können, muss daher zunächst analysiert werden, ob eine Variation der Pulshöhe oder aber eine Variation der Pulsform vorgelegen hat. Dazu wurden die zur Mn- K_α -Linie beitragenden Pulse bezüglich ihres zeitlichen Verlaufs verglichen, indem eine Methode benutzt wurde, welche den Wert des Signals für jedes einzelne Sample im aufgezeichneten Zeitbereich getrennt betrachtet, und dessen Standardabweichung in Bezug auf das entsprechende Sample des Musterpulses berechnet.

Repräsentativ soll diese Analyse bezüglich der instrumentellen Linienform des Aufbaus *ohne* Absorber durchgeführt werden, da die Ursache für die Linienverbreiterung hier besonders deutlich sichtbar sein sollte. Um die einzelnen Merkmale noch deutlicher hervortreten zu lassen, wurde die elektronische Bandbreite der analysierten Pulse auf $f_g = 3$ kHz reduziert und ein etwaiger Signal-Offset der Einzelpulse zu Null verschoben.

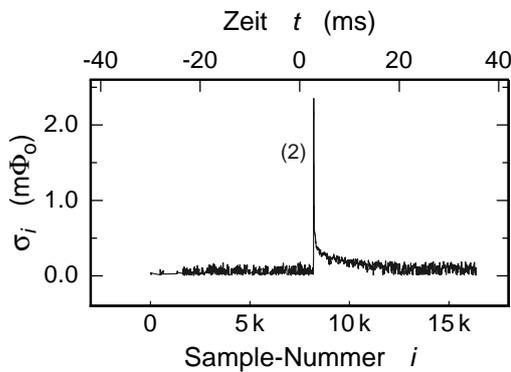
Das Ergebnis dieser Analyse ist in Abb. 7.11 dargestellt. Der mit (1) gekennzeichnete Bereich zeigt einen nahezu konstanten Wert der Standardabweichungen σ_i . Dieser Wert entspricht dem rms-Wert des weißen Rauschens des Ruhesignals, dessen spektrale Dichte S_ϕ zuvor zu $\sqrt{S_\phi} = 8,2 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ bestimmt wurde.

Im folgenden Schritt wurde der rms-Wert des Rauschens des Kalorimeter-Ruhesignals von den berechneten Werten der Standardabweichungen σ_i quadratisch subtrahiert.⁵ Das Ergebnis ist in Abb. 7.12 dargestellt. Die in dieser Abbildung sichtbare

⁵Das Ergebnis der *quadratischen* Subtraktion zweier Größen a und b ist $\sqrt{a^2 - b^2}$.

**Abbildung 7.11:**

Standardabweichungen des Signals σ_i für jedes einzelne Sample i . Die elektronische Bandbreite ist auf 3 kHz reduziert worden.

**Abbildung 7.12:**

Standardabweichungen des Signals σ_i für jedes einzelne Sample i nach der quadratischen Subtraktion des Rauschens des Kalorimeter-Ruhe-signals.

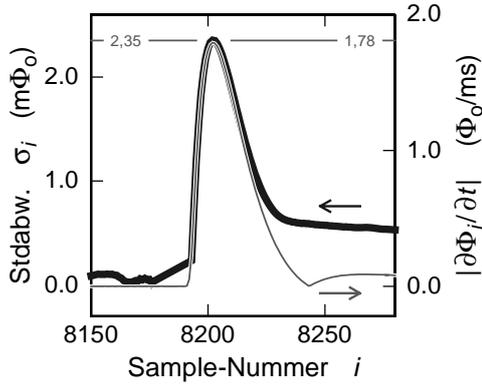
Zunahme der Streuung der einzelnen Werte der Standardabweichungen σ_i ist in der Natur der quadratischen Subtraktion begründet. Der in dieser Abbildung gekennzeichnete Bereich (2) zeigt eine scharfe Spitze, die durch eine zeitliche Verschiebung des tatsächlichen Zeitverlaufes der einzelnen Pulse gegenüber dem Musterpuls entsteht. Diese Verschiebung ist in der Regel durch den sogenannten Trigger-Jitter⁶ bedingt. Wie man sich schnell klar machen kann, gibt die Form der Spitze in diesem Fall den Absolutwert der zeitlichen Ableitung des Musterpulses wieder: Für die Standardabweichung σ_i des Samples i gilt

$$\sigma_i^2 = \frac{1}{\Delta t} \int_{-\frac{\Delta t}{2}}^{+\frac{\Delta t}{2}} \left(\frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} \Big|_i t' \right)^2 dt' = \left(\frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} \Big|_i \right)^2 \frac{1}{\Delta t} \int_{-\frac{\Delta t}{2}}^{+\frac{\Delta t}{2}} t'^2 dt', \quad (7.4)$$

wobei Δt die Zeit zwischen zwei aufeinander folgenden Samples beschreibt. In diesem Fall betrug $\Delta t = 5 \mu\text{s}$. In Abbildung 7.13 ist der Vergleich der Standardabweichungen σ_i aus Abb. 7.12 (*linke Ordinate*) und der Ableitung des Musterpulses (*rechte Ordinate*) auf einer vergrößerten Abszissenskala dargestellt.

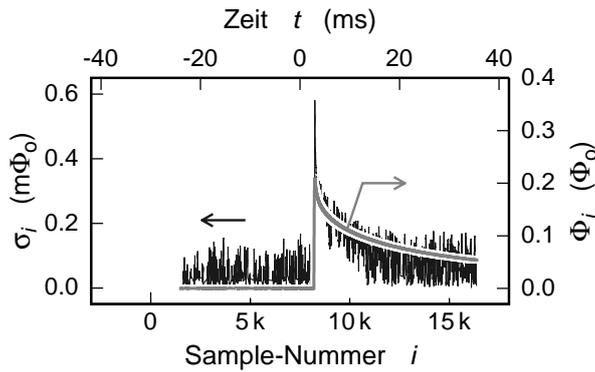
Man erkennt die gute Übereinstimmung zwischen den beiden Kurven im Bereich der Maxima. Mit Hilfe von Gl. 7.4 und den Werten für das Maximum der Standardabweichungen ($2,35 \text{ m}\Phi_0$) und das der zeitlichen Ableitung des Musterpulses ($1,78 \Phi_0/\text{ms}$) kann nachgewiesen werden, dass der Trigger-Jitter hier ca. $\pm 0,5$ Samples betrug. Dies entspricht dem minimal Jitter eines AD-Wandlers.

⁶Jitter: <engl.> (Zittern, hier: Variable Zeitdifferenz (Jitterzeit) zwischen tatsächlichem Absorptionszeitpunkt und dem ersten darauffolgenden Sample der Datendigitalisierung).

**Abbildung 7.13:**

Vergleich zwischen den Standardabweichungen σ_i für jedes einzelne Sample i , aufgetragen auf der linken und der Absolutwert der zeitlichen Ableitung der Samples des Musterpulses auf der rechten Ordinate.

Für die Sample-Nummern $i > 8220$ zeigt der Vergleich jedoch eine Abweichung zwischen den dargestellten Kurven. Um diese Abweichung genauer analysieren zu können, wurde von den Werten der Standardabweichungen σ_i die geeignet skalierten Werte des Absolutwertes der zeitlichen Ableitung des Musterpulses abgezogen.⁷ In Abb. 7.14 ist das Ergebnis dieser Subtraktion (schwarze Kurve, *linke Ordinate*) dargestellt. Zusätzlich eingezeichnet ist der Musterpulses (hellgraue Kurve, *rech-*

**Abbildung 7.14:**

Vergleich zwischen den Standardabweichungen σ_i und den Samples des Musterpulses Φ_i . Die Werte der Standardabweichungen wurden zuvor hinsichtlich des Rauschens des Kalorimeter-Ruhsignals und der durch den Trigger-Jitter bedingten Spitzenform korrigiert.

te Ordinate). Der Vergleich der beiden Kurven zeigt, dass deren Formen innerhalb der Streuung der Werte der Standardabweichungen σ_i sehr gut übereinstimmen.⁸ Diese Übereinstimmung lässt die Folgerung zu, dass tatsächlich eine Variation der Pulshöhe vorgelegen hat, da nur in diesem Fall

$$\sigma_i \propto \Phi(t)|_i \quad (7.5)$$

folgen kann! Da der Musterpuls aus der Absorption eines Röntgenquants der Energie $E_\gamma = 5,89 \text{ keV}$ resultiert, lässt aus dem Vergleich der Absolutwerte der beiden Kurven ein FWHM-Wert der Pulshöhenvariation von ca. 20 eV errechnen. Dieser Wert

⁷Die Skalierung wurde so vorgenommen, dass das Maximum der zeitlichen Ableitung und jenes der Standardabweichung σ_i übereinstimmen.

⁸Die verbleibende kleine Spitze in den Werten der Standardabweichungen σ_i ist mit großer Wahrscheinlichkeit auf einen Artefakt der SQUID-Ausleselektronik zurückzuführen.

setzt sich aus der quadratischen Summe der Beiträge der natürlichen Linienform⁹ mit ca. 5,4 eV, der elektronischen Linienform von ca. 9,2 eV und einem weiteren Beitrag zunächst unbekannter Herkunft von ca. 17 eV zusammen.

Aufgrund des Ergebnisses dieser Analyse kann daher zusammenfassend gesagt werden, dass die Breite der experimentellen Linienform tatsächlich auf eine zusätzliche, bisher unbekannte Pulshöhenvariation mit einer FWHM-Breite von ca. 17 eV zurückzuführen ist. Eine Analyse der Linienform des Röntgenspektrums, das mit dem Aufbau *mit* Absorber aufgenommen wurde, führt zu derselben Schlussfolgerung.

7.3.2 Ursachen für die Linienverbreiterung

Als Ursachen für die beobachtete Linienverbreiterung durch Variation der Pulshöhe kommen verschiedene Mechanismen in Frage, die physikalischen oder experimentellen Ursprungs sein könnten. Die möglichen Mechanismen werden im Folgenden diskutiert.

7.3.3 Temperaturschwankungen

Die Pulshöhe eines magnetischen Kalorimeters zeigt eine Temperaturabhängigkeit, welche für das in dieser Arbeit diskutierte Kalorimeter in Abb. 5.10 dargestellt ist. Jegliche Schwankung der Arbeitstemperatur führt daher zu einer Schwankung der Höhe des Kalorimetersignals. In Abb. 7.15 ist ein Histogramm die Schwankung der Temperatur des Wärmebades dargestellt, die während der Datenaufzeichnung für das in Abb. 7.5 gezeigte Röntgenspektrum herrschte. In der Abbildung ist erkenn-

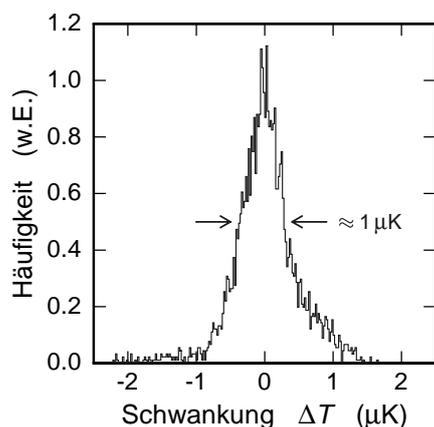


Abbildung 7.15:

Histogramm der Schwankung der Temperatur des Wärmebades während der Datenaufzeichnung für das in Abb. 7.5 gezeigte Energiespektrum.

bar, dass die Schwankung der Temperatur des Wärmebades während der Datenaufzeichnung einen Wert in der Größenordnung von $\sigma_T \approx 1 \mu\text{K}$ besaß. Daraus lässt sich eine Schwankung der relativen Pulshöhe von $\approx 0,026\text{‰}$ berechnen. Dieser Wert ist außerordentlich klein, weshalb eine Temperaturschwankung in diesem Fall als Ur-

⁹Dieser Beitrag folgt aus der Aufspaltung der $K_{\alpha 1}$ - und der $K_{\alpha 2}$ -Linie von ca. 12 eV, der FWHM-Breite der Einzellinien von ca. 2,5 eV, sowie dem gegebenen Intensitätsverhältnis.

che für die Linienverbreiterung ausgeschlossen werden kann.

7.3.4 Magnetfeldschwankungen

Das Kalorimetersignal besitzt neben der Temperatur- auch eine Magnetfeldabhängigkeit. Dadurch bedingt könnte auch eine Schwankung des Magnetfeldes zu einer Schwankung der Höhe des Kalorimetersignals führen. Auch dieser Beitrag soll im Folgenden abgeschätzt werden.

Es soll eine Schwankung des Magnetfeldes von der Größe des Erdmagnetfeldes von 0,05 mT (rms-Wert) außerhalb des Vanadium-Abschirmung angenommen werden. Diese supraleitende Vanadium-Abschirmung schwächt äußere Magnetfeldänderungen zum Ort des Sensors hin um einem Faktor 6000 ab. Die Schwankung des Magnetfeldes am Ort des Sensors beträgt daher nur 8,3 nT (rms-Wert) und die daraus errechenbare Schwankung der Pulshöhe nur ca. 0,01 ‰.

Allerdings muss beachtet werden, dass eine Schwankung des Magnetfeldes indirekt eine Schwankung der Arbeitstemperatur auslösen kann. Dies ist der Fall, wenn der Signalausgang des auf Magnetfelder empfindlichen SQUID-Magnetometers mit dem Temperaturregler verbunden ist (vergl. Abschnitt 4.4). Die oben angenommene Schwankung des Magnetfeldes am Ort des Sensors entspricht der eines Flusses von $8 \text{ m}\Phi_0$ (rms-Wert). Der Temperaturregler würde diesem Fluss durch die Veränderung der Badtemperatur entgegenwirken. Auf diese Weise entstünde eine Schwankung der Badtemperatur von $26 \mu\text{K}$ (rms-Wert) und eine daraus resultierende Schwankung der Pulshöhe von 0,8 ‰. Daraus folgt, dass nur unplausibel hohe Schwankungen des äußeren Magnetfeldes zu einer merklichen Linienverbreiterung führen könnten.

Zusammenfassend kann daher gesagt werden, dass die beobachtete Variation der Pulshöhe nicht unmittelbar auf eine experimentelle Ursache zurückgeführt werden kann. Daher liegt die Vermutung nahe, dass bereits eine Variation der Energie der Röntgenquanten vorgelegen hat, die über die Variation durch die natürliche Linienform hinausgeht.

7.3.5 Variation der Röntgenenergie

Für eine Variation der Röntgenenergie kommen zwei mögliche Ursachen in Frage: Zum einen ist eine Variation der von der Quelle emittierten Röntgenenergie und zum anderen ist ein Compton-Streuprozess der emittierten Röntgenquanten denkbar.

Zu den Verbreiterungsmechanismen, die zu einer Variation der von der Quelle emittierten Röntgenenergie führen, zählen beispielsweise die natürliche Linienverbreiterung, die Doppler- und die Druckverbreiterung. Die natürliche Linienform ist in der an dieser Stelle diskutierten *instrumentellen* Linienform nicht enthalten. Und die Doppler- und Stoßverbreiterung können ausgeschlossen werden, da die Quelle in metallischer Form vorlag und bei den Messungen eine Temperatur von $T = 30 \text{ mK}$ besaß.

Plausibel erscheint dagegen, dass die Ursache in der Compton-Streuung der Röntgenquanten begründet ist. Möglich ist die Compton-Streuung an den Oberflächen des Kollimators, der in den Strahlengang zwischen Quelle und Sensor eingefügt wurde (vergl. Abb. 4.13). Diese Möglichkeit wird durch den Sachverhalt bekräftigt, dass der Strahlengang des Aufbaus ohne Absorber durch den Kollimator vergleichsweise stark eingeschränkt wurde und eine große Linienverbreiterung beobachtet wurde. Dagegen war der Strahlengang des Aufbaus mit Absorber weniger eingeschränkt, und es wurde eine geringere Linienverbreiterung beobachtet. Genaue Berechnungen der Linienformen, die aus Compton-Streuung der Röntgenquanten an den Kollimatoren bekannter Geometrie resultieren, waren aus Zeitgründen im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht möglich.

Dass die Compton-Streuung tatsächlich als eine mögliche Ursache für die Linienverbreiterung betrachtet werden darf, kann durch ein Merkmal in dem in Abb. 7.5 dargestellten Röntgenspektrum unterstrichen werden: Trotz der vergleichsweise großen Streuung der Einzelwerte der Höhenverteilung kann eine deutliche Abweichung der experimentell bestimmten Linienform von der durch Faltung hervorgehenden, berechneten Form beobachtet werden (in der Abbildung im Bereich $5,84 \text{ keV} < E_\gamma < 5,87 \text{ keV}$).

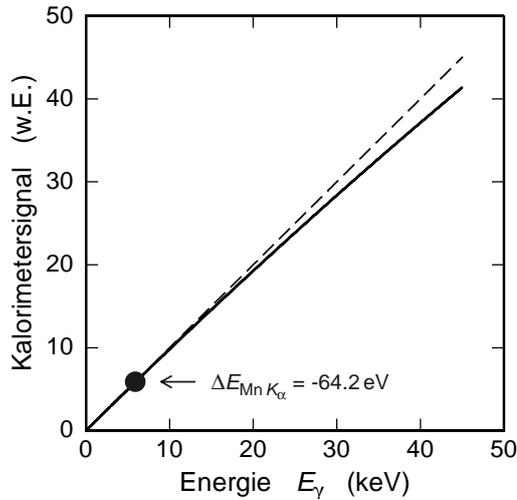
Diese charakteristische einseitige Verbreiterung könnte durch Compton-Streuung erklärt werden. Ob auch die zusätzliche scheinbar beidseitige Verbreiterung auf diese Weise verstanden werden kann, muss noch anhand von Berechnungen gezeigt werden.

Einfluss des Sensors auf die Linienverbreiterung

Neben den zuvor beschriebenen experimentell bedingten Verbreiterungsmechanismen könnte eine Linienverbreiterung auch auf eine Ursache zurückzuführen sein, die in den physikalischen Eigenschaften des Sensors oder des Absorbers begründet ist. Hierbei handelt es sich um noch unerforschte Physik, für dessen Untersuchung das hier vorgestellte magnetische Kalorimeter ein ideales Werkzeug darstellt. Um den Ursprung der Linienverbreiterung bestimmen zu können, müssen neben den oben genannten Berechnungen zusätzlich noch weitere Messungen mit unterschiedlichen Absorbergeometrien und -materialien erfolgen.

7.4 Linearität des Kalorimetersignals

Bereits in Abschnitt 3.5.2 wurde beschrieben, dass der Sensor des magnetischen Kalorimeter eine vergleichsweise große Wärmekapazität besitzt. Für den Aufbau mit Absorber beträgt die Wärmekapazität von Sensor und Absorber ca. $1,3 \cdot 10^{-12} \text{ J/K}$. Daher ist die Temperaturerhöhung bei der Absorption eines Röntgenquants der Energie $E_\gamma = 5,89 \text{ keV}$ mit $\Delta T \approx 0,7 \text{ mK}$ (bei $T = 35 \text{ mK}$ und $B = 3,0 \text{ mT}$) vergleichsweise gering. Da sowohl die Magnetisierungsänderung als auch die Wärmekapazität von der Temperatur abhängen, erwartet man dennoch eine gewisse Abweichung von dem linearen Zusammenhang zwischen der Höhe des Kalorimetersignals und der absorbierten Energie. In Abb. 7.16 ist die Abweichung für den in dieser Arbeit beschriebenen Aufbau mit Absorber dargestellt. Die gestrichelte Gerade stellt

**Abbildung 7.16:**

Berechnete Höhe des Kalorimetersignals als Funktion der absorbierten Energie (durchgezogene Kurve). Gestrichelt eingezeichnet ist zusätzlich die Identität zwischen der Energie (in keV) und der Pulshöhe (in willkürlichen Einheiten). ($T = 35 \text{ mK}$, $B = 3,0 \text{ mT}$)

die Identität zwischen den Werten der absorbierten Energie E_γ (in Einheiten von keV) und der Höhe des Kalorimetersignals (in willkürlichen Einheiten) dar. Die durchgezogene Kurve gibt die *berechnete* Höhe des Kalorimetersignals als Funktion der Energie wieder. Deutlich erkennt man die Krümmung dieser berechneten Kurve. Wäre ein experimentell bestimmtes Röntgenspektrum bezüglich sehr kleiner Energien kalibriert, so folgt aus der Berechnung, dass die Linien mit den Röntgenenergien von Mangan auf der kalibrierten Energieskala bei ca. 64 eV geringeren Werten abgebildet würden.

Die in Abbildungen 7.5 und 7.9 a) dargestellten Röntgenspektren wurden jedoch hinsichtlich der Mn- K_α -Linie kalibriert. Eine mögliche Abweichung von der Linearität könnte nur anhand der Position der Mn- K_β -Linie erfolgen. Deren berechnete Verschiebung auf der so kalibrierten Energieskala beträgt in diesem Fall nur ca. 1 ‰. In dem experimentell bestimmten Energiespektrum ist diese geringe Verschiebung aufgrund der Breite der experimentellen Linienform nur qualitativ zu beobachten. Eine signifikante Abweichung von der Linearität ist nicht messbar.

Diese, am Beispiel des hier vorgestellten Aufbaus beschriebene exzellente Linearität des Kalorimetersignals ist eine grundsätzliche Eigenschaft magnetischer Kalorimeter, welche auf die große Wärmekapazität der magnetischen Momente zurückzuführen ist. In dieser Eigenschaft ist das magnetische Kalorimeter vielen konkurrierenden Konzepten überlegen.

8. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden der Aufbau und die Eigenschaften eines magnetischen Kalorimeters diskutiert. Die Funktionsweise beruht auf der empfindlichen Messung der Änderung der Magnetisierung, welche der paramagnetische Sensor in einem schwachen Magnetfeld und bei der Absorption eines Röntgenquants entwickelt. Der Sensor befand sich innerhalb der Leiterschleife eines SQUIDs mit dessen Hilfe die Messung durchgeführt wurde.

Der Sensor bestand aus einer Legierung von Gold und einer geringen Konzentration Erbium (^{166}Er , 300 ppm). Dessen magnetische Momente können im schwachen Magnetfeld und bei tiefen Temperaturen als ein Zweiniveau-System beschrieben werden. Die thermodynamischen Eigenschaften, wie z.B. Magnetisierung oder Wärmekapazität und die daraus abgeleitete Größe des Kalorimetersignals, können daher analytisch berechnet werden. Beim Vergleich mit den experimentell bestimmten Werten zeigte sich jedoch, dass die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten berücksichtigt werden muss. Dazu wurden zwei Berechnungsmethoden entwickelt. Die erste Methode basiert auf der Berücksichtigung der RKKY-Wechselwirkung innerhalb der Molekularfeld-Näherung für paarweise wechselwirkende magnetische Momente. Die zweite Methode berücksichtigt darüberhinaus die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung und beschreibt die paarweise Wechselwirkung in einem quantenmechanisch korrekten Modell. In beiden Modellen wird die Stärke der RKKY-Wechselwirkung als freier Parameter behandelt.

Die Berechnungsergebnisse beider Methoden unterscheiden sich geringfügig, zeigen jedoch innerhalb der Rechen- und Messgenauigkeit eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Die beste Übereinstimmung der berechneten mit den experimentellen Werten der Pulshöhe wird erreicht, wenn die Stärke der RKKY-Wechselwirkung einen Faktor 5 bis 7 größer als die der magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung gewählt wird. Bei der unabhängigen Anpassung der Berechnungsergebnisse an die Messwerte der Magnetisierung wurde jedoch ein etwas größerer Wert von 7 bis 10 benötigt. Die Ursache für diesen Unterschied könnte darin begründet sein, dass die Messungen auf zwei unterschiedlichen Zeitskalen stattfanden und so gewisse Eigenschaften des zeitlichen Verlaufs des Kalorimetersignals in der thermodynamischen Beschreibung nicht korrekt berücksichtigt wurden.

Zur Beschreibung des zeitlichen Verlaufs des Kalorimetersignals wurde ein erweitertes thermodynamisches Modell vorgestellt. Dabei wurde zu den bisher bekannten Subsystemen des Sensors (Phononen, Leitungselektronen und wechselwirkende magnetische Momente) ein weiteres System hinzugefügt. Dieses System besitzt bei tiefen Temperaturen eine Wärmekapazität die ca. 25 % der Gesamtwärmekapazität beträgt. Die Existenz dieses Systems ist mit großer Wahrscheinlichkeit auf die Anwesenheit der Goldkerne zurückzuführen; um eine endgültige Aussage treffen zu können

müssen jedoch noch weitere Messungen erfolgen.

Das Rauschen des Ruhesignals des Kalorimeters wurde ausführlich charakterisiert. Das bei Temperaturen oberhalb von 100 mK beobachtete Frequenzspektrum des Rauschens sowie dessen Temperaturabhängigkeit konnten durch die thermische Bewegung der Leitungselektronen innerhalb des metallischen Sensors erklärt werden. Unterhalb von 100 mK wurde das weiße Rauschen vom Eigenrauschen des SQUIDs dominiert. Völlig unerwartet wurde jedoch außerdem ein Rauschbeitrag beobachtet, der in Anwesenheit eines schwachen Magnetfeldes zu tiefen Frequenzen und abnehmender Temperatur zunimmt. Die Ursache dieses Rauschbeitrags ist mit großer Wahrscheinlichkeit im Sensor begründet. Möglicherweise besteht ein Zusammenhang zwischen dem Ursprung des Rauschens und der zusätzlichen Wärmekapazität.

Das Auflösungsvermögen des in dieser Arbeit vorgestellten magnetischen Kalorimeters wurde anhand von zwei geringfügig unterschiedlichen Aufbauten diskutiert. Die derzeit höchste instrumentelle Energieauflösung eines magnetischen Kalorimeters von 13 eV (FWHM-Wert) bei einer Röntgenenergie von 5,9 keV wurde mit einem Aufbau erreicht, dessen AuEr-Sensor mit einem Goldabsorber gekoppelt war. Diese Auflösung ist um nahezu einen Faktor 10 größer als die Auslösung, die mit kommerziellen Si(Li)-Halbleiterdetektoren erreicht werden kann. Die Thermalisierungszeit des Sensors mit dem Wärmebad betrug für den verwendeten Aufbau 15 ms und war ausschließlich durch die begrenzte Wärmeleitfähigkeit des Chip-Substrates limitiert. Wie bereits demonstriert wurde, kann diese Thermalisierungszeit auf $\lesssim 200 \mu\text{s}$ reduziert werden. In diesem Fall wären Zählraten von bis zu 1000 Ereignissen pro Sekunde möglich.

Die Größe des Kalorimetersignals wies eine sehr gute Linearität auf. Diese hohe Linearität ist letztlich durch die für Tieftemperatur-Detektoren vergleichsweise große Wärmekapazität des Sensors von ca. $1,3 \cdot 10^{-12} \text{ J/K}$ bedingt. Diese Wärmekapazität ermöglicht auch eine große Flexibilität bei der Wahl des Absorbers, wodurch ein solcher Tieftemperatur-Detektor außerordentlich vielseitig eingesetzt werden kann.

Das instrumentelle Auflösungsvermögen von 13 eV ist derzeit noch durch zwei Beiträge begrenzt. Zum einen tragen niederfrequente Störungen und das erstmals beobachtete niederfrequente Rauschen mit ca. 9,5 eV bei. Zum anderen wurde eine zusätzliche Verbreiterung der experimentell bestimmten Linienform eines magnetischen Kalorimeters von ca. 9 eV beobachtet.¹ Als Ursache für diese Verbreiterung kann derzeit die Compton-Streuung von Röntgenquanten an Teilen des Kollimators nicht ausgeschlossen werden.

Mit der demonstrierten Energieauflösung von 13 eV und der großen Wärmekapazität stellt das magnetische Kalorimeter eine attraktive Alternative für konkurrierende Konzepte dar, wenn beispielsweise Absorber mit großer Wärmekapazität Anwendung finden sollen. Mit dem Auffinden und der Beseitigung der Ursache des niederfrequenten Rauschens und der beobachteten zusätzlichen Verbreiterung sollte mit einem optimierten magnetischen Kalorimeter bereits in naher Zukunft im Röntgenenergiebereich von $E_\gamma \approx 6 \text{ keV}$ eine Energieauflösung des magnetischen Kalorimeters von unter 1 eV erreichbar sein.

¹Die instrumentelle Auflösung folgt nach *quadratischer* Addition: $\sqrt{(9 \text{ eV})^2 + (9,5 \text{ eV})^2} \approx 13 \text{ eV}$.

Literaturverzeichnis

- [Abr70] A. Abragam, B. Bleaney, Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions, Clarendon press, Oxford (1970)
- [Ale99] A. Alessandrello *et al.*, Phys. Rev. B, **82**, 513 (1999)
- [Ara66] S. Arajs, G.R. Dunmyre, J. Less Com. Met., **10**, 220 (1966)
- [Ash76] N.W. Ashcorft, N.D. Mermin, Solid State Physics, Saunders College Publishing (1976), ISBN: 0-03-049346-3
- [Ban93] S.R. Bandler, C. Enss, R.E. Lanou, H.J. Maris, T. More, F.S. Porter, G.M. Seidel, J. Low Temp. Phys., **93**, 709 (1993)
- [Büh88] M. Bühler, E. Umlauf, Euro. Phys. Lett., **5**, 297 (1988)
- [Büh93] M. Bühler, T. Fausch, E. Umlauf, Europhys. Lett., **23**, 529 (1993)
- [Cal51] H.B. Callen, T.A. Welton, Phys. Rev., **83**, 34 (1951)
- [Cur03] P. Curie, A. Laborde, Séance, Acad. Sci. Paris, **136**, 673 (1903)
- [Cla76] J. Clarke, W.M. Goubau, M.B. Ketchen, J. Low. Temp. Phys., **25**, 99 (1976)
- [Dav73] D. Davidov, C. Rettori, A. Dixon, K. Baberschke, E.P. Chock, R. Orbach, Phys. Rev. B, **8**, 3563 (1973)
- [DeG58] P.-G. de Gennes, Compt. rend., **247**, 1836 (1958)
- [DHa98] R. Den Hartog, P. Verhoeve, A. Peacock, A. Poelaeret, N. Rando, IEEE Transact. Appl. Supercond., **9**, 4495 (1998)
- [Dok82] H.D. Dokter, D. Davidov, F.R. Hoeksta, G.J. Nieuwenhuys, Physica, **106B**, 93 (1982)
- [Dru90] D. Drung, R. Cantor, M. Peters, H.J. Scheer, H. Hoch, Appl. Phys. Lett., **57**, 406 (1990)
- [Edw68] L.R. Edwards, S. Levgold, J. Appl. Phys., **39**, 3250 (1968)
- [Ens00] C. Enss, Tieftemperaturphysik, Springer-Verlag Heidelberg, in Vorbereitung (2000)
- [Fio91] E. Fiorini, Physica B, **169**, 388 (1991)

-
- [Fir96] R.B. Firestone, Table of Isotopes, Wiley & Sons Inc., New York (1996), ISBN: 0-471-07730-5
- [Fle98] A. Fleischmann, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1998)
- [Fle00] A. Fleischmann, J. Schönefeld, J. Sollner, C. Enss, J. Adams, S.R. Bandler, G.M. Seidel, J. Low Temp. Phys., **108**, 7 (2000)
- [Fra76] S. Fraga, Handbook of Atomic Data, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam (1976), ISBN: 0-444-41461-4
- [Gil98] D.T. Gillespie, J. Appl. Phys., **83**, 3118 (1998)
- [Grf66] D. Griffiths, B.R. Coles, Phys. Rev. Letters, **16**, 1093 (1966)
- [Hah92] W. Hahn, M. Loewenhaupt, B. Frick, Physica B, **180&181**, 176 (1992)
- [Hal85] E.E. Haller, Infrared Phys., **25**, 257 (1985)
- [Her99] T. Herrmannsdörfer, R. König, C. Enss, Proc. 22nd Int. Conf. Low Temp. Phys., Physica B, (2000), im Druck.
- [Hey00] P. Heyl, Dissertation, Universität Heidelberg, (2000), in Vorbereitung.
- [Höl97] G. Hölzer, M. Fritsch, M. Deutsch, J. Härtwig, E. Förster, Phys. Rev. A, **56**, 4554 (1997)
- [Hor99] K. Horst, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1999)
- [IBM94] Superconductor Week, Vol. 8, No. 34, (1994)
- [Irw00] K.D. Irwin, G.C. Hilton, J.M. Martinis, S. Deiker, M. Bergren, S.W. Nam, D.A. Rudman, D.A. Wollman, Proc. LTD-8, Im Druck in Nucl. Instr. and Meth. **A**
- [Jay81] J.M. Jaycox, M.B. Ketchen, IEEE Trans. Magn., **MAC 17**, 400 (1981)
- [Joh28] J.B. Johnson, Phys. Rev., **32**, 97 (1928)
- [Jos62] B.D. Josephson, Phys. Lett., **1**, 251 (1962), Adv. Phys., **14**, 419 (1962)
- [Kap63] T.A. Kaplan, D.H. Lyons, Phys. Rev., **129**, 2072 (1963)
- [Kas56] T. Kasuya, Progr. Theor. Phys., **16**, 45 (1956)
- [Ket82] M.B. Ketchen, J.M. Jaycox, Appl. Phys. Lett., **40**, 736 (1982)
- [Ket91] M.B. Ketchen *et al.*, Appl. Phys. Lett., **59**, 2609 (1991)
- [Ket94] M.B. Ketchen, private Mitteilung durch Firma Quantum Magnetics.
- [Kit89] C. Kittel, Quantentheorie der Festkörper, Oldenbourg Verlag, München (1989) ISBN: 3486238434
- [Koch83] R.H. Koch, J. Clarke, W.M. Goubau, J.M. Martinis, C.M Pegreum, D.J. Van Harlingen, J. Low Temp. Phys., **51**, 207 (1983)

-
- [Koch94] R.H. Koch, V. Foglietti, J.R. Rozen, K.G. Stawiasz, M.B. Ketchen, D.K. Lathrop, J.Z. Sun W.J. Gallagher, *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 100 (1994)
- [Koch96] R.H. Koch, J.R. Rozen, P. Wötgens, T. Picunko, W.J. Goss, D. Gambrel, D. Lathrop, R. Wiegert, D. Overway, *Rev. Sci. Instr.*, **67** 2968 (1996)
- [Kor50] J. Korryng, *Physica*, **16** 601 (1950)
- [Kra97] H. Kraus, *Proc. LTD-7*, 113 (1997), ISBN: 3-00-002266-X
- [Lab97] S.E. Labov *et al.*, *Proc. LTD-7*, 113 (1997), ISBN: 3-00-002266-X
- [Liu61] S.H. Liu, *Phys. Rev.*, **121**, 451 (1961)
- [LLW62] K.R. Lea, M.J.M. Leask and W.P. Wolf, *J. Phys. Chem. Solids*, **23**, 1381 (1962)
- [Lon50] F. London, *Superfluids*, Wiley, New York (1950).
- [Lou74] O.V. Lounasmaa, *Experimental Principles and Methods below 1 K*, Academic Press, London (1974), ISBN: 0-12-455950-6
- [Mal82] H. Maletta, *J. Appl. Phys.*, **53**, 2185 (1982)
- [McC68] D.E. McCumber, *J. Appl. Phys.*, **39**, 3113 (1968)
- [McC93] D. McCammon, W. Cui, M. Juda, J. Morgenthaler, J. Zhang, R.L. Kelley, S.S. Hold, G.M. Madejski, S.H. Moseley, A.E. Szymkowiak, *Nucl. Instr. and Meth.*, **A326**, 157 (1993)
- [Mea96] C.A. Mears, S.E. Labov, M. Frank, M.A. Lindeman, L.J. Hiller, H. Netel, A.T. Barfknecht, *Nucl. Instr. and Meth.*, **A370**, 53 (1996)
- [Mot93] C.D. Motchenbacher, J.A. Connelly, *Low-noise electronic system design*, J. Wiley & Sons Inc. New York (1993), ISBN: 0471577421
- [Myd93] J.A. Mydosh, *Spin Glasses: An Experimental Introduction*, Taylor & Francis (1993), ISBN: 0748400389
- [Nar94] L.R. Narasimhan, M. Takigawa, M.B. Ketchen, *Appl. Phys. Lett.*, **65**, 1305 (1994)
- [NuR92] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery, *Numerical Recipes in C*, Cambridge University Press (1992), ISBN: 0-521-43108-5
- [Nyq28] H. Nyquist, *Phys. Rev.*, **32**, 110 (1928)
- [Opp89] A.V. Oppenheim und R.W. Schafer, *Discrete-Time Signal Processing*, Englewood Cliffs, NJ, USA: Prentice-Hall (1998) ISBN: 0137549202
- [Pob95] F. Pobell, *Matter and methods at low temperatures*, Springer-Verlag Heidelberg (1996), ISBN: 3-540-58572-9
- [Rön1896] W.C. Röntgen, *Science*, **3**, 227 (1896) und **3**, 726 (1896)
- [Rog84] C.T. Rogers, R.A. Buhrman, *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 1272 (1984)

- [Rud54] M.A. Ruderman, C. Kittel, *Phys. Rev.*, **96**, 99 (1954)
- [Sad96] B. Sadoulet, *Proc. of the 21st Intern. Conf. on Low Temp. Phys., Prag 1996*, S. 3361
- [Schön96] J. Schönefeld, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1996)
- [Schno67] H.W. Schnopper, *Phys. Rev.*, **154**, 118 (1967)
- [Sie97] L. Siebert, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1997)
- [Sim35] F. Simon, *Nature* **135**, 763 (1935)
- [Sjo75] M.E. Sjösand, G.M. Seidel, *Phys. Rev. B*, **11**, 3292 (1975)
- [Sol99] J.S. Sollner, Diplomarbeit, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1999)
- [Ste68] W.C. Steward, *Appl. Phys. Lett.*, **12**, 277 (1968)
- [Stv52] K.W.H. Stevens, *Proc. Phys. Soc. Lond.*, **A65**, 209 (1952)
- [Tao71] L.J. Tao, D. Davidov, R. Orbach, E.P. Chock, *Phys. Rev. B*, **4**, 5 (1971)
- [Twe96] D. Twerenbold, *Prep. Prog. Phys.*, **59** (1996)
- [Ull00] J.N. Ullom, M. Frank, J.M. Horn, S.E. Labov, K. Langty, W.H. Benner, *Proc. LTD-8*, im Druck in *Nucl. Instr. and Meth.* **A**
- [Var84] T. Varpula, T. Poutanen, *J. Appl. Phys.*, **55**, 4015 (1984)
- [Wal77] L.R. Walker, R.E. Walstedt, *Phys. Rev. Lett.*, **38**, 514 (1977)
- [Wal80] L.R. Walker, R.E. Walstedt, *Phys. Rev. B*, **22**, 3816 (1980)
- [Wei95] R. Weis, Dissertation, Inst. f. Angew. Physik, Universität Heidelberg (1995)
- [Wei96] H. Weinstock (ed.), *SQUID Sensors*, Kluwer Academic Publishers, Netherlands (1996), ISBN: 0792343506
- [Wel87] F.C. Wellstood, C. Urbina, J. Clarke, *Appl. Phys. Lett.*, **50**, 772 (1987)
- [Wil69] G. Williams, L.L. Hirst, *Phys. Rev.*, **185**, 407 (1969)
- [Wol97] D.A. Wollman, K.D. Irwin, G.C. Hilton, L.L. Dulcie, D.E. Newbury, J.M. Martinis, *J. of Microscopy*, **188**, 196 (1997)
- [Wol00] D.A. Wollman, S.W. Nam, D.E. Newbury, G.C. Hilton, K.D. Irwin, N.F. Bergren, S. Deiker, D.A. Rudman, J.M. Martinis, *Proc. LTD-8*, im Druck in *Nucl. Instr. and Meth.*, **A**
- [Yos57] K. Yosida, *Phys. Rev.*, **106**, 893 (1957)
- [Yos96] K. Yosida, *Theory of Magnetism*, Springer-Verlag Heidelberg (1996), ISBN: 3-540-60651-3

Danksagung

Meinen Dank möchte ich all denen aussprechen, die in vielfältiger Weise zum Zustandekommen und Gelingen dieser Dissertation beigetragen haben. Hierbei gilt besonderer Dank

- Herrn Priv. Doz. Dr. Christian Enss für die interessante Themenstellung und seine kompetente Betreuung. Danken möchte ich ihm auch für die einmalige Chance, zwölf außerordentlich prägende Monate meiner Promotion in den Vereinigten Staaten zu verbringen.
- Herrn Prof. Dr. George M. Seidel (Brown University, USA) für seine fast väterliche Aufnahme in seinem Arbeitskreis und die Betreuung während meines einjährigen Aufenthaltes in Providence, Rhode Island, USA. Seine Kenntnisse waren für die Fortentwicklung des Kalorimeters und insbesondere bei der Entwicklung der Algorithmen für die Berechnung des Einflusses der Spin-Spin-Wechselwirkung in der Molekularfeld-Näherung von tragender Bedeutung.
- Herrn Prof. Dr. Siegfried Hunklinger für seine vielen Anregungen und die freundliche Aufnahme im Arbeitskreis.
- Herrn Dipl. Phys. Andreas Fleischmann für die großartige Zusammenarbeit: Die unzähligen Diskussionen, ob im Labor, oder auf der Treppe vor dem Haus; die vielen Berechnungen, die zum Schluss dann doch meist doppelt angefertigt wurden und nicht zuletzt die 'unbarmherzige', kritische Durchsicht des Manuskripts.
- Herrn Dr. Robert Weis für die vielen Antworten auf Hard- und Software-Fragen und die stets prompte Hilfe rund um die technische Einrichtung des Labors. Nicht zuletzt haben die zahlreichen Diskussionen in physikalischen und nicht-physikalischen Themengebieten für eine willkommene Auflockerung des Labor-Alltags geführt.

- Herrn Dipl. Phys. Peter Heyl (Heidelberg Instruments) für die präzise Laserbearbeitung der AuEr-Sensoren und die elektronenmikroskopischen Aufnahmen.
- Den Mitarbeitern des Lehrstuhls Experimentelle Physik V der Universität Bayreuth, Dr. Thomas Herrmannsdörfer, Dr. Reinhard König und Prof. Dr. Hans Braun, für die Bereitstellung der technischen Einrichtungen für die Herstellung der AuEr-Materialien und für die Magnetisierungsmessungen.
- Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt für die Präzision bei der termingerechten Fertigung der feinmechanischen Kleinteile und ihrer aller Geduld, wenn's denn mal doch nicht gepasst hat... Selbstverständlich gilt besonderer Dank auch den Mitarbeitern der Elektronikwerkstatt, Peter Frauenfeld und Rolf Weidner, für die vielen und selbstverständlich immer rauscharmen Schaltungen für die Signalaufbereitung. Dieter Hertel und Roger Gradt danke ich für den quasi nie abreißenen Strom von verflüssigten Gasen.
- Den ehemaligen 'Bolos' Lars Siebert, Matthias Böe, Jürgen Sollner und Karsten Horst für die sehr gute Zusammenarbeit und die Mühe und Sorgfalt bei der Weiterentwicklung des 'großen' Detektors.
- Meinen amerikanischen Laborkollegen Joe S. Adams, Simon R. Bandler und Yong H. Kim für die 'great time' im 'Lab' oder auch im 'Paragon' oder in 'the GCB'.
- Dem weiteren Laborteam Stefan Ludwig, Andreas Bredereck, Detlef Schreiber für die unterhaltsame Atmosphäre.
- Den Kollegen der umliegenden Labors für das angenehme Arbeitsklima, die Mensagänge und Marstall-Kaffeesitzungen: Dr. Johannes Claßen, Till Burkert, Martin Hansmann, Markus Heitz, Thorsten Kramer, Jürgen Meier, André Wachowiak und Dr. Dietrich Wehnes.
- Meinem physikalischen und nichtphysikalischen Freundeskreis für den mentalen Wiederaufbau nach langen, durchmessenen Abenden (Nächten?), und ganz besonders Britta Krumrain und Alka Celic für die Jagt nach Tip_pfehl_rn.

Zuletzt, aber sicher nicht an letzter Stelle gebührt besonderer Dank meiner Familie, die mich während meines Studiums auf vielfältige Weise unterstützt hat und meinem Sohn Luis, durch den ich, beispielsweise beim Sandkuchenbacken, immer wieder völlig 'abschalten' konnte.