

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

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Matthias Wohlfahrt
aus Heidelberg

Tag der mündlichen Prüfung: 23.05.2001

Untersuchung der dielektrischen Tiefemperaturanomalien von Mehrkomponentengläsern in Magnetfeldern

Gutachter: Prof. Dr. Siegfried Hunklinger

Priv.-Doz. Dr. Reimer Kühn

Zusammenfassung:

In dieser Arbeit werden Untersuchungen der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Mehrkomponentengläsern ($\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ und BK7) in Magnetfeldern bis 24 T beschrieben. Die kürzlich in $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Glas gefundene Abhängigkeit der elektrischen Permittivität von kleinsten magnetischen Feldern konnte bestätigt werden. Als Funktion des Magnetfeldes treten unterhalb von 500 mK charakteristische nicht-monotone Änderungen auf, die mit abnehmender Temperatur ausgeprägter werden. Der qualitative Verlauf der Permittivität ändert sich in Abhängigkeit von der Amplitude des elektrischen Meßfeldes. Zur Untersuchung des Einflusses von paramagnetischen Verunreinigungen wurden weitere Messungen an dem nahezu eisenfreien Glas BK7 vorgenommen. Auch bei diesem Glas konnte unterhalb einer Temperatur von 100 mK eine nichtmonotone Abhängigkeit der elektrischen Permittivität vom Magnetfeld nachgewiesen werden. Wie im Bariumaluminosilikatglas beobachtet, verstärkt sich der Effekt mit abnehmender Temperatur, und kann durch Erhöhung der Anregungsspannung beeinflusst werden. Als Ursache für die Magnetfeldabhängigkeit können paramagnetische Verunreinigungen deshalb ausgeschlossen werden. Die in beiden Gläsern beobachtete Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Funktion kann als magnetischer Flußeffect und Anzeichen für die Ausbildung kohärenter Quantenzustände der Tunnelzustandssysteme in Gläsern interpretiert werden.

Measurements of the dielectric low temperature anomalies of multicomponent glasses in magnetic fields

The dielectric properties of two multicomponent glasses ($\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ and BK7) have been investigated in magnetic fields at low temperatures. The recently reported extremely sensitive dielectric response of Barium aluminosilicat glass to weak magnetic fields could be confirmed. Below 500 mK the magnetic field exhibits a characteristic nonmonotonic behaviour, which becomes increasingly pronounced with decreasing temperature. Additionally, the magnitude of the applied AC field influences the shape of the field dependence. In order to examine the influence of paramagnetic impurities, low temperature dielectric measurements of an almost iron-free BK7 glass in magnetic fields have been carried out. The electric permittivity of this glass exhibits a similar nonmonotonic field dependence. As observed in the Barium aluminosilicat glass, the effect intensifies with decreasing temperature and is sensitive to the AC field magnitude. Therefore, paramagnetic impurities can be ruled out the cause of the magnetic field dependence. The observed sensitivity of the dielectric function to magnetic fields could be interpreted as a magnetic flux effect and a formation of coherent quantum states of the tunneling states in glasses.

Inhaltsverzeichnis

Tabellenverzeichnis	XI
Abbildungsverzeichnis	XIII
Nomenklatur	XV
1 Einleitung	1
2 Suche nach einem magnetfeldunabhängigen Tieftemperaturthermometer	5
2.1 Tieftemperaturskala	5
2.2 Kapazitätsthermometer	6
2.2.1 Glaskapazitätsthermometer	7
2.2.2 Kapazitätsthermometer aus BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	8
3 Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens von Gläsern	11
3.1 Thermodynamische Feldtheorie	11
3.1.1 Felder und Bilanzgleichungen	11
3.1.2 Thermodynamische Materialtheorie	13
3.1.3 Ergebnisse und Folgerungen aus der thermodynamischen Feldtheorie	17
3.1.4 Dielektrische Relaxation	20
3.1.5 Zusammenfassung der thermodynamischen Materialtheorie	22
3.2 Das Standardtunnelmodell	24
3.2.1 Beschreibung durch Zweiniveausysteme	24
3.2.2 Ankopplung von Tunnelzustandssystemen an elektrische Felder	28
3.2.3 Ankopplung von Tunnelzustandssystemen an Phononen	34
3.2.4 Integration über die Verteilungsfunktion	36
3.2.5 Relaxation nach Anlegen eines hohen elektrischen Gleichfeldes	39
3.3 Quanteneffekte des magnetischen Flusses	40
3.3.1 Modell von Kettemann, Fulde und Strehlow	41
4 Experimentelles	43
4.1 Erzeugung ultratiefer Temperaturen	43
4.1.1 ³ He- ⁴ He-Verdünnungskühlung	44
4.1.2 Die Mikrokkelvinanlage MKA 3	47
4.2 Messung tiefer Temperaturen	53

4.2.1	Widerstandsthermometer	54
4.2.2	Temperaturmessung und -regelung	56
4.2.3	Platin-NMR-Thermometrie	56
4.2.4	Wolfram-Fixpunkt-Thermometer	59
4.3	Erzeugung des Magnetfelds	60
4.3.1	Zweistufiges Magnetsystem	60
4.3.2	Magnetnetzteile	61
4.3.3	Hochfeldmagnetlabor Grenoble	63
4.4	Datenerfassung	63
4.4.1	Gashandlingsystem	64
4.4.2	Meßdatenerfassung	65
4.5	Messung der dielektrischen Funktion	65
4.6	Proben	67
4.6.1	Probenanalyse	68
4.6.2	Probenpräparation	69
4.6.3	Probenhalter	71
5	Dielektrische Untersuchungen im Nullfeld	73
5.1	Messungen an BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ im Nullfeld	73
5.1.1	Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion	73
5.1.2	Relaxation nach Anlegen eines konstanten elektrischen Feldes	76
5.2	Messungen an BK7 im Nullfeld	79
5.2.1	Anpassung mit $\Delta_{0,\min}/k_B$ im Millikelvinbereich	81
5.2.2	Einfluß von E_{\max}	82
5.2.3	Vergleich mit Daten anderer Autoren	83
5.2.4	Diskussion von $\Delta_{0,\min}$	84
5.2.5	Abweichungen vom Standardtunnelmodell	86
6	Dielektrische Untersuchungen im Magnetfeld	89
6.1	Messungen an BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ im Magnetfeld	89
6.2	Messungen an BK7 im Magnetfeld	96
6.2.1	Darstellung der Meßergebnisse	96
6.3	Diskussion der Ergebnisse	100
6.3.1	Einfluß des Magnetfelds auf die Thermometrie	100
6.3.2	Einfluß der Fe ³⁺ -Verunreinigungen	102
6.3.3	Zusammenfassung der Ergebnisse der BK7-Messungen	104
6.4	Spekulationen	105
6.5	Vergleich mit Messungen anderer Autoren	107
7	Zusammenfassung	109
	Literaturverzeichnis	113

Tabellenverzeichnis

4.1	Physikalische Eigenschaften von ^3He und ^4He	43
4.2	Baugruppen der MKA 3.	52
4.3	Am MKA 3 eingesetzte Widerstandsthermometer	55
4.4	Parameter des Platin-NMR-Thermometers am MKA 3.	57
4.5	Daten des Wolfram-Fixpunkts	59
4.6	Parameter des zweistufigen Magneten	62
4.7	Leistungsdaten des M10	63
4.8	Parameter der AH2500-Brücke	67
4.9	Parameter der untersuchten Gläser	68
4.10	ICP-AES-Analyse der untersuchten Gläser	69
5.1	Steigung der Kapazität von BK7	81
5.2	Literaturwerte von $\Delta_{0,\text{min}}$	85
6.1	Eisenverunreinigungen in den untersuchten Gläsern	96
6.2	Isotope mit Kernspin	97

Abbildungsverzeichnis

2.1	³ He-Schmelzdruckkurve	5
2.2	Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität bei SiO ₂	7
2.3	Kapazitätsthermometer aus Spectrosil im Magnetfeld	8
2.4	Kapazität eines BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ -Dickfilmsensors im Magnetfeld	9
2.5	Erster Hinweis auf die Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität	10
3.1	Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials	24
3.2	Verteilungsfunktion $P_2(E, \Delta_0)$	27
3.3	Ankopplung eines Zweiniveausystems an ein elektrisches Feld	28
3.4	Frequenzabhängigkeit der Debye-Funktion	33
3.5	Frequenzabhängigkeit des resonanten Anteils	33
3.6	Vergleich der Relaxationsraten	35
3.7	Berechnung der dielektrischen Eigenschaften nach dem Tunnelmodell	38
3.8	Relaxation nach Anlegen eines elektrischen Gleichfeldes	40
3.9	Sombropotential	41
3.10	Flußperiodische Energieeigenwerte	42
4.1	Dampfdruck von ³ He und ⁴ He	44
4.2	Phasendiagramm von ³ He- ⁴ He-Mischungen	45
4.3	Funktionsprinzip eines Verdünnungskryostaten	45
4.4	Kühlleistungen von ³ He-Verdampfung und ³ He- ⁴ He-Mischungskühlung	46
4.5	Schematischer Aufbau der MKA3	48
4.6	Verdünnungskryostateinsatz DRI 550	49
4.7	Dämpfung von HF-Kabine und Netzfilter	53
4.8	Typische Kalibration des Platin-NMR-Thermometers	58
4.9	Kompensation des Magnetfeldes	62
4.10	Schema der Datenerfassung	64
4.11	Blockschaltbild AH2500-Meßbrücke	66
4.12	Schnitt BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ -Dickfilmsensor	70
4.13	Probenhalter für scheibenförmige Glasproben	71
5.1	Dielektrische Funktion von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ bis Raumtemperatur.	74
5.2	Dielektrische Funktion von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ für verschiedene U	75
5.3	Verlustleistung des BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ -Dickfilmsensors	76
5.4	Relaxation nach Anlegen eines elektrischen Gleichfeldes	77

5.5	Einfluß eines konstanten elektrischen Feldes für verschiedene Temperaturen	78
5.6	Steigung der Relaxation nach Anlegen eines Gleichfeldes	78
5.7	Temperaturabhängigkeit der Kapazität und des Verlustwinkels von BK7 .	80
5.8	Verlustwinkel von BK7 in doppellogarithmischer Auftragung	81
5.9	Rechnungen nach dem Tunnelmodell für verschiedene $\Delta_{0,\min}$	82
5.10	Rechnungen nach dem Tunnelmodell für verschiedene E_{\max}	83
5.11	Verlustleistung in der BK7-Probe	87
6.1	Magnetfeldabhängigkeit bei BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ bis 200 mT	90
6.2	Magnetfeldabhängigkeit von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ bis 1 T	91
6.3	Magnetfeldabhängigkeit von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ bis 24 T	92
6.4	Magnetfeldabhängigkeit von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ für verschiedene T	93
6.5	Magnetfeldabhängigkeit von BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂ für verschiedene U	95
6.6	Einfluß des Magnetfelds auf die Wärmekapazität der Probe	98
6.7	Magnetfeldabhängigkeit von BK7 für verschiedene T	99
6.8	Magnetfeldabhängigkeit von BK7 für verschiedene U	100
6.9	Messungen mit unterschiedlicher Thermometrie	101
6.10	Vergleich des Magnetfeldeffekts bei BK7 und BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	103
6.11	Vergleich von Duran und BK7	104
6.12	Möglicher Phasenübergang bei BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	106
6.13	Akustische Messungen an BK7 im Magnetfeld	108
6.14	Dielektrische hochfrequente Messung an BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	108

Nomenklatur

A	Fläche, Affinität
a_+, a_-	Amplitudenfunktionen des Separationsansatzes
\mathbf{B}	magnetische Flußdichte
B_J	Brioullin-Funktion
$\mathbf{b}(t)$	Lagevektor des alten Ursprungs im neuen Koordinatensystem
C	Kapazität
D_{ij}	Überlapp der Wellenfunktionen
$D(E)$	Zustandsdichte
\mathbf{D}	dielektrische Verschiebung
\mathbf{d}	Abstandsvektor
e	Elementarladung ($1.602189 \cdot 10^{-19}$ A s)
E	Energie, Energieaufspaltung eines Zweiniveausystems
E_{\pm}	Energieeigenwerte des ungestörten Zweiniveausystems
E_{\max}	maximale Energieaufspaltung
\mathcal{E}	elektrische Feldstärke
$\tilde{\mathcal{E}}$	elektromotive Intensität
\mathbf{e}	Verzerrungstensor
\mathbf{F}	orientierte Fläche
\mathbf{F}	Deformationsgradient
f	spezifische freie Energie
$f(E)$	Bose-Einstein-Verteilungsfunktion
G	Konduktanz
g	Landé-Faktor
$g(t)$	Antwortfunktion auf deltaförmige Anregung
g_n	nuklearer g-Faktor
H, H_0, H_{ij}	Hamilton-Operator bzw. -matrix
H_{int}	Stör-Hamiltonoperator
h	Plancksches Wirkungsquantum ($6.6260755 \cdot 10^{-34}$ J s)
$\hbar = h/2\pi$	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
I	Kernspin, Strom
J	Gesamtdrehimpulsquantenzahl
\mathbf{J}	Stromdichte
\mathbf{J}^{F}	Stromdichte der freien Ladungsträger

Symbol	Bezeichnung
k_B	Boltzmann-Konstante ($1.380662 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$)
$2l$	Abstand der beiden Potentialmulden im Zweiniveausystem
L	molare latente Wärme
M	Magnetisierbarkeit
M_n	Kernmagnetisierung
m	Masse
m	magnetisches Moment
N_A	Avogadrozahl ($6.020452 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)
n_m	Zahldichte der magnetischen Dipole
n_p	Zahldichte der elektrischen Dipole
O	orthogonale Drehmatrix
p	Betrag des Dipolmoments, hydrostatischer Druck
p_c	kritischer Druck
p_m	Schmelzdruck
$p_0 := ql$	Dipolmoment eines Tunnelsystems
p	Dipolmoment
P	Polarisierbarkeit
P_1, P_2, P_3	Verteilungsfunktionen im Tunnelmodell
\bar{P}	Konstante der Verteilungsfunktion im Tunnelmodell
Q	Ladung
q	Ladungsdichte
q^F	Ladungsdichte der freien Ladungsträger
q	Wärmeflußdichte
q_α	Wellenvektor von Phononen der Polarisationsrichtung α
\dot{Q}	Kühlleistung
R	Gaskonstante ($8.31451 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$)
R	im Deformationsgradienten enthaltenen Drehungen
S	Entropie
S^x, S^y, S^z	Pauli-Spinmatrizen
T	Temperatur
T_n	Temperatur der Kerne
T_b	Siedetemperatur
T_c	kritische Temperatur
T_s	Temperatur des suprafluiden Übergangs
t	Zeit
$t(\Phi)$	flußperiodische Tunnelaufspaltung
t	Spannungstensor

Symbol	Bezeichnung
U	Längenänderungen im Deformationsgradienten
u	Dichte der spezifischen inneren Energie
V	Volumen
$V(x)$	Potential eines Zweiniveausystems
$V_1(x), V_2(x)$	harmonische Einzelpotentiale
V_B	Barrierrhöhe beim Doppelmuldenpotential
v	Geschwindigkeit
v_α	Schallgeschwindigkeit für Polarisationsrichtung α
W	Matrix der Winkelgeschwindigkeiten
$\mathbf{x}(\mathbf{X}, t)$	Bahnkurve des materiellen Körpers
X	Lagrange-Koordinaten des materiellen Körpers
$\alpha_{1\dots 6}$	Koeffizienten des Spannungstensors
$\beta_{1\dots 3}$	Koeffizienten des Wärmeflusses
γ	Kopplungskonstante
γ	Kopplungskonstante an Phononen der Polarisationsrichtung α
$\gamma_{1\dots 3}$	Magnetische Suszeptibilitäten
Δ	Asymmetrie des Doppelmuldenpotentials
Δ_0	Tunnelaufspaltung
$\Delta_{0,\min}$	minimale Tunnelaufspaltung
δ_{ij}	Kronecker-Symbol
$\tan \delta$	Verlustwinkel
ϵ', ϵ''	Real- bzw. Imaginärteil der elektrischen Permittivität
ϵ_0	Feldkonstante ($8.854188 \cdot 10^{-12} \text{ A s V}^{-1} \text{ m}^{-1}$)
ϵ_r	Permittivitätszahl
ϵ_r^∞	Permittivitätszahl für $\omega \rightarrow \infty$
ϵ_{ijk}	total antisymmetrischer Tensor 3. Stufe
η	spezifische Entropie
$\varphi_{1,2}$	Grundzustandswellenfunktionen des harmonischen Oszillators
φ_\pm	Eigenfunktionen des Zweiniveausystems
$\psi(x, t)$	Wellenfunktion
Φ	magnetischer Fluß
Φ_0	Flußquantum
Φ	Entropiefluß
λ	Tunnelparameter
λ_n	Curie-Faktor des Kerns
μ_0	Permeabilitätskonstante des Vakuums ($4\pi \cdot 10^{-7} \text{ V s A}^{-1} \text{ m}^{-1}$)
μ_B	Bohrsches Magneton ($9.274078 \cdot 10^{-24} \text{ A m}^2$)

Symbol	Bezeichnung
μ_n	Kernmagneton ($5.051 \cdot 10^{-27} \text{ J T}^{-1}$)
ξ	innere Variable
ρ	Massendichte
ρ_R	Dichte in der Referenzkonfiguration
$\vartheta := \Delta_0/\Delta$	Verhältnis von Tunnelaufspaltung zu Asymmetrieenergie
τ oder τ_1	Relaxationszeit des Einphononenprozesses
τ_2	Relaxationszeit der Phasenkohärenz
$\chi, \chi_{1..3}$	dielektrische Suszeptibilitäten
χ_n	Kernsuszeptibilität
χ_∞	Suszeptibilität für schnell veränderliche Prozesse
Ω	Eigenfrequenz des harmonischen Oszillators
ω	Kreisfrequenz einer harmonischen Anregung
$\omega_r := E/\hbar$	Kreisfrequenz der Energieaufspaltung

1 Einleitung

Seit der Entwicklung der ^4He -Verdampfungskühlung durch H. Kammerlingh-Onnes Anfang des letzten Jahrhunderts und den darauffolgenden Weiterentwicklungen der Kühltechnik, stehen die Tieftemperatureigenschaften von Festkörpern im Blickpunkt des Interesses. Zu Beginn beschränkte man sich auf die Untersuchung kristalliner Festkörper, da deren regelmäßiger Aufbau die theoretische Modellierung einfacher macht. Mit den 1971 von Zeller und Pohl [Zel71] beschriebenen signifikanten Unterschieden im Tieftemperaturverhalten der spezifischen Wärme und Wärmeleitung von amorphen und kristallinen Substanzen begann die systematische Untersuchung von amorphen Materialien. Während die spezifische Wärme von reinen Kristallen bei tiefen Temperaturen dem Debyeschen T^3 -Verhalten folgt, zeigen amorphe Materialien eine schwächere, ungefähr lineare Variation mit der Temperatur und einen um mehrere Größenordnungen höheren Absolutwert. Dies war unerwartet, da nach der klassischen Theorie in diesem Temperaturbereich langwellige Phononen dominieren und somit die lokale Unordnung des amorphen Festkörpers nicht ins Gewicht fallen dürfte. Weiterhin stellte man auch in akustischen [Hun72, Gol73, Hun76a] und dielektrischen [Sch75, Fro77a] Untersuchungen Anomalien im Tieftemperaturbereich fest.

Eine weitere Erkenntnis war die weitgehende Universalität des physikalischen Tieftemperaturverhaltens bei einer Vielzahl von amorphen Materialien (siehe z. B. [Phi81, Esq98]). Die Tieftemperaturphänomene, sowie die Unabhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung, konnte niederenergetischen Anregungszuständen zugeordnet werden, die in der ungeordneten Struktur amorpher Festkörper begründet sind.

Zur Erklärung dieses Sachverhalts wurden daraufhin Modelle postuliert, von denen das phänomenologische *Tunnelmodell* [And72, Phi72] die heute anerkannte Beschreibung der ungewöhnlichen Tieftemperatureigenschaften darstellt. Bei diesem Modell wird angenommen, daß Atome oder Atomgruppen energetisch leicht unterschiedliche Gleichgewichtslagen einnehmen können. Der Umlagerungsprozeß zwischen diesen Lagen kann selbst bei tiefen Temperaturen durch quantenmechanisches Tunneln vollzogen werden. Im Gegensatz zu der diskreten Verteilung der Parameter von Tunnelssystemen in kristallinen Defekstrukturen sind die Parameter in amorphen Festkörpern breit verteilt.

Wenngleich das Tunnelmodell die Tieftemperatureigenschaften von Gläsern relativ erfolgreich vorhersagt, gibt es dennoch Kritikpunkte. Einerseits fehlt bislang noch das mikroskopische Verständnis der Tunnelysteme. Andererseits zeigen experimentell beobachtete Abweichungen von den Vorhersagen des Tunnelmodells in akustischen und dielektrischen Experimenten bei tiefen Temperaturen [Hun76b, Ens89, vC94, Esq92, Rog97],

daß die Beschreibung des Standardtunnelmodells zu grob ist. Verschiedene Autoren [Kle78, Yu88, Ens97] schlagen zur Erklärung dieser Abweichungen die Berücksichtigung von Wechselwirkungen zwischen Tunnelsystemen vor, die im Standardtunnelmodell unberücksichtigt bleiben.

Um die Wechselwirkungen zwischen Tunnelsystemen systematisch zu studieren, ist die Entwicklung neuer experimenteller Methoden unerlässlich. Messungen des Tieftemperaturverhaltens von Festkörpern im elektromagnetischen Feld bieten die prinzipielle Möglichkeit, makroskopische Quanteneigenschaften zu untersuchen. Wie im Verlauf der Arbeit aufgezeigt wird, sind hierbei dielektrische Experimente im Magnetfeld erfolgversprechend.

In *klassischer Beschreibung* werden die Eigenschaften des elektromagnetischen Feldes durch seine Wirkung auf den Bewegungszustand einer Testladung q über die Lorentzkraft $\mathbf{F} = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$ bestimmt. Das elektromagnetische Feld in einem Kontinuum ist dann durch die lokalen Werte der elektrischen Feldstärke \mathbf{E} und der magnetischen Flußdichte \mathbf{B} gegeben.

In der *Quantenmechanik* hingegen erweist sich der Begriff der Kraft als wenig nützlich. Der quantenmechanische Zustand eines geladenen Teilchens wird durch die Schrödingergleichung bestimmt, in der das skalare Potential Φ und das Vektorpotential \mathbf{A} auftreten. Diese Potentiale sind aber nur bis auf eine Eichfunktion Λ entsprechend den Eichtransformationen $\tilde{\Phi} = \Phi - \partial\Lambda/\partial t$ und $\tilde{\mathbf{A}} = \mathbf{A} + \nabla\Lambda$ eindeutig bestimmt. Es ist nicht zu erwarten, daß die Potentiale selbst eine physikalische Bedeutung haben.

Die Eichtransformation bewirkt einen zusätzlichen Phasenfaktor der Wellenfunktion $\tilde{\psi} = \psi e^{iq\Lambda/\hbar}$. Somit kann die Wellenfunktion, auch wenn die Feldstärken $\mathbf{E} = -\nabla\Phi - \partial\mathbf{A}/\partial t$ und $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ verschwinden, noch von den Potentialen beeinflusst werden. Dies hat zur Vorhersage von beobachtbaren Quanteninterferenzphänomenen geführt, dem sog. *Aharonov-Bohm-Effekt* [Aha59], der auch experimentell bestätigt werden konnte (siehe z. B. [Ola85]).

Magnetische Flußeffekte wie Oszillationen des Magnetowiderstandes wurden in metallischen normal- und supraleitenden Systemen verschiedenster Geometrien untersucht [Aro87]. Dabei wurde gefunden, daß die magnetischen Flußeffekte entscheidend von der Struktur der Topologie und Potentiale bestimmt werden.

Erste Hinweise auf magnetische Flußeffekte in Gläsern wurden von Strehlow et al. [Str98] und in dieser Arbeit [Str00] im Mehrkomponentenglas BaO-Al₂O₃-SiO₂ gefunden. Das oszillatorische Magnetfeldverhalten der dielektrischen Permittivität wurde von Kettmann et al. [Ket99] durch mesoskopisch kohärentes Quantentunneln der niederenergetischen Anregungszustände erklärt. Daher eröffnet sich mit der Erforschung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern im Magnetfeld eine neue, vielversprechende Möglichkeit, die Dynamik und Wechselwirkung von Tunnelzustandssystemen mit Dipolmoment in amorphen Substanzen zu untersuchen.

Die Beobachtung von Strehlow et al. war der Ausgangspunkt der vorliegenden Arbeit. Zuerst wurden weitere Experimente an BaO-Al₂O₃-SiO₂ vorgenommen, um den Magnetfeldeffekt zu bestätigen und weiter zu untersuchen. Dazu wurde

- bei anderen (höheren) Temperaturen gemessen,
- höhere Magnetfelder angelegt,
- die Anregungsspannung variiert und
- andere Probenhalterung benutzt.

Der letzte Punkt faßt zusammen, daß Meßartefakte durch Gehäuse und thermische Ankopplung ausgeschlossen werden sollten.

Da BaO-Al₂O₃-SiO₂ möglicherweise ein anomales Verhalten im Magnetfeld zeigt, wurde bei weiteren Experimenten auf das optische Standardglas BK7 und das Geräteglas Duran übergegangen. Dadurch konnte neben dem Material sowohl die Probengeometrie und -größe als auch die Beschaffenheit der Elektroden variiert werden.

Im Kapitel 3.1 werden anhand von allgemeinen thermodynamischen Überlegungen Aussagen über die Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität gewonnen. Abschnitt 3.2 ist einer einführenden Beschreibung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften nach dem sog. *Standardtunnelmodell* und einer Erweiterung desselben gewidmet (Abschnitt 3.3.1).

Da die geplanten Messungen empfindlich auf Einflüsse äußerer Felder reagieren, mußte ein Kryostat benutzt werden, der über eine Abschirmung verfügt. Dazu stand an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt der sich im Bau befindliche Kryostat MKA 3 zur Verfügung. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der MKA 3 fertiggestellt und in Betrieb genommen. Zudem wurde Thermometrie, Datenerfassung und Probenhalterung aufgebaut und der zweistufige Magnet zur Erzeugung des Magnetfeldes in Betrieb genommen. Kapitel 4 beinhaltet die Beschreibung dieser experimentellen Arbeiten zur Durchführung der Versuche und den Aufbau des Experiments.

In Kapitel 5 sind dielektrische Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ und BK7 im Nullfeld dargestellt und interpretiert. Diese Messungen wurden einerseits durchgeführt, um die Vorhersagen des Standardtunnelmodells zu überprüfen. Andererseits sollte sichergestellt werden, daß sich das Glas BaO-Al₂O₃-SiO₂ „normal“ verhält und die Probenhalterung und -präparation der Gläser keinen Einfluß auf die dielektrischen Eigenschaften haben.

Die Messungen in Magnetfeldern sind in Kapitel 6 beschrieben. Zusätzlich finden sich dort Überlegungen über mögliche Ursachen der Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften. Die Zusammenfassung in Kapitel 7 beschließt die vorliegende Arbeit. Das nun folgende Kapitel 2 gibt eine weitere, eher praktisch orientierte, Motivation zur Untersuchung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern im Magnetfeld.

2 Auf der Suche nach einem magnetfeldunabhängigen Tieftemperaturthermometer

Ein weiteres – eher praktisch und kommerziell orientiertes – Interesse am dielektrischen Tieftemperaturverhalten von Gläsern besteht in der möglichen Nutzung als kapazitives, magnetfeldunabhängiges Thermometer.

2.1 Tieftemperaturskala

Seit Oktober 2000 ist die auf der ^3He -Schmelzdruckkurve basierende *Provisional Low Temperature Scale of 2000* (PLTS-2000) in Kraft. Diese Skala erweitert die bisherige Temperaturskala ITS-90, beginnend bei einer Temperatur von 1 K hinunter bis zu einer Temperatur von 0.9 mK. Der ^3He -Schmelzdruck (siehe Bild 2.1) eignet sich als thermodynamisches Thermometer, da nach der Clausius-Clapeyron-Gleichung:

$$\frac{dp_m}{dT} = \frac{\Delta S}{\Delta V}, \quad (2.1)$$

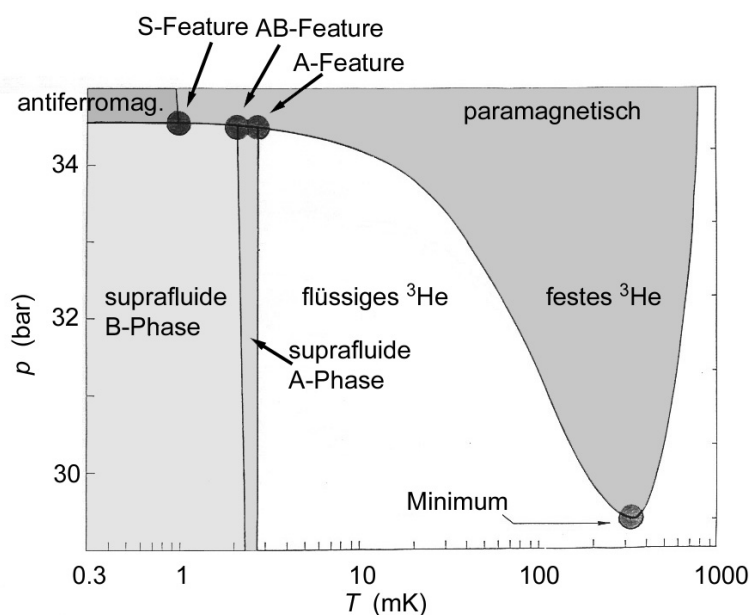


Bild 2.1: ^3He -Schmelzdruckkurve. Die Fixpunkte der Phasenübergänge und das Minimum sind hervorgehoben. Nach den Daten aus [Küh01].

der Schmelzdruck p_m eine eindeutige Funktion der Temperatur ist. Dabei sind ΔS und ΔV die Entropie- und Volumendifferenzen zwischen flüssiger und fester Phase. Außerdem besitzt die Schmelzdruckkurve vier Fixpunkte (siehe Bild 2.1), an denen die Druckmessung kalibriert werden kann.

Untersuchungen im Tieftemperaturbereich der PLTS-2000 können nur an Kernentmagnetisierungskryostaten vorgenommen werden. Zudem gibt es in der aktuellen Forschung viele Gebiete, in denen Magnetfelder in tiefen Temperaturen angewendet werden, z. B. die Forschung an suprafluidem ^3He , spinpolarisiertem ^3He , ^3He - ^4He -Mischungen in hohen Magnetfeldern oder am fraktionierten Quanten-Hall-Effekt. Somit besteht ein Bedarf nach einem magnetfeldunabhängigen Thermometer für tiefe Temperaturen.

In Magnetfeldern sind jedoch ein Großteil der üblichen Tieftemperaturthermometer nicht einsetzbar. *Magnetische Thermometer* können selbstverständlich nicht verwendet werden. *Widerstandsthermometer* weisen einen temperaturabhängigen Magnetowiderstand auf, der aufwendig einkalibriert werden muß. Bei der ^3He -Schmelzdruckkurve gibt es einen magnetischen Phasenübergang (siehe Bild 2.1), somit ist eine Anwendung als Thermometer im Magnetfeld zumindest zweifelhaft. Die Messung der Temperatur mit Hilfe eines *Rauschthermometers* erfordert lange Meßzeiten und wird üblicherweise induktiv oder sogar mit einem SQUID gemessen. Dieses Thermometer ist somit ungeeignet. Bei der *Kernorientierungsthermometrie* werden die Zerfälle von teilweise magnetischen Niveaus betrachtet, daher reagiert dieses Thermometer äußerst empfindlich auf Magnetfelder.

2.2 Kapazitätsthermometer

Wie im nachfolgenden Kapitel 3.1 dargestellt wird, kann für isotrope Dielektrika aus allgemeinen thermodynamischen Überlegungen auf eine quadratische Abhängigkeit der dielektrischen Funktion vom Magnetfeld geschlossen werden. In linearer Näherung ergibt sich sogar eine Unabhängigkeit vom Magnetfeld. Daraus folgt, daß kapazitive Thermometer für magnetfeldunabhängige Tieftemperaturmessungen verwendet werden könnten.

Erste Versuche wurden von Makhan'kov et al. [Mak69] mit kommerziellen Kondensatoren für Raumtemperaturnutzung durchgeführt. Sie maßen die Dielektrizitätskonstante bis zu einer Temperatur von 1.7 K, stellten dabei allerdings fest, daß die Sensitivität unterhalb einer Temperatur von 20 K schnell abnimmt.

Die Dielektrizitätskonstante von hoch dotierten Ionenkristallen und Glaskeramiken ist im Tieftemperaturbereich stark temperaturabhängig. Brand und andere [Bra70] verwendeten deshalb einen Lithium-dotierten KCl-Kristall für kapazitive Temperaturmessungen im Magnetfeld. Sie konnten keine Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität in Magnetfeldern bis 10 Tesla feststellen. SrTiO_3 -Glaskeramik wird ebenfalls als Tieftempertursensor benutzt [Law71a, Law71b, Bak72], bei Untersuchungen im Magnetfeld konnte keine [Law71a, Rub71] bzw. nur die quadratische Abhängigkeit nichtlinearer Dielektrika [Nau83] der Kapazität vom Magnetfeld festgestellt werden. Für genaue Tempera-

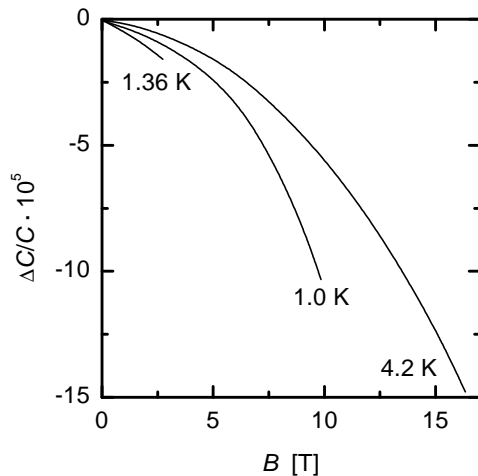


Bild 2.2: Magnetfeldabhängigkeit der relativen Änderung der Kapazität eines Glaskapazitätsthermometers bei drei verschiedenen Temperaturen in Magnetfeldern bis 19 T. Nach [Nau83].

turmessungen bei tiefen Temperaturen ist die Empfindlichkeit von Glaskeramik-Kapazitätssensoren ausreichend, doch der Absolutwert der Kapazität ändert sich bei jedem Abkühlzyklus. Die kommerziell erhältlichen SrTiO_3 -Sensoren¹ können deshalb nur als Kontroll- und Regelsensoren eingesetzt werden und müssen bei jedem Abkühlen neu kalibriert werden.

In neuerer Zeit werden auch weitere Materialien untersucht, so z. B. die feste Lösung $(\text{Pb}_{0.45}\text{Sn}_{0.55})_2\text{P}_2\text{Se}_6$ [Mai93], deren Dielektrizitätskonstante ebenfalls eine starke Temperaturabhängigkeit aufweist und von Magnetfeldern bis 20 T bei Temperaturen bis unter 30 mK unabhängig ist [Pen94, Pen95, Pen96].

2.2.1 Glaskapazitätsthermometer

Gläser weisen aufgrund der im Abschnitt 1 erwähnten niederenergetischen Anregungszustände, die als *Tunnelsysteme* interpretiert werden können (siehe Abschnitt 3.2), ebenfalls eine starke Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Konstanten im Tieftemperaturbereich auf. Im Gegensatz zu Glaskeramiken verändert sich der Wert nicht bei jedem Abkühlzyklus. Kieselglas, eine SiO_2 -Modifikation, wird deshalb häufig als Dielektrikum eines kapazitiven Tieftemperaturthermometer verwendet. Dieses Material wird sowohl in natürlicher Form als Spectrosil [Fro77b, Rei86, Wie87] als auch als synthetisches Glas Suprasil I [Ich82] eingesetzt. Beide Gläser enthalten rund 1200 ppm OH^- [Her94].

Ein Glaskapazitätsthermometer von Frossati et al. [Fro80], konstruiert aus einem Mikroskopdeckglas, wurde von Naughton und anderen [Nau83] in hohen Magnetfeldern untersucht (siehe Bild 2.2). Dabei fanden sie – wie von der Thermodynamik für nichtlineare Dielektrika vorhergesagt, siehe Abschnitt 3.1.3.1 – eine quadratische Abhängigkeit vom Magnetfeld, die allerdings erst bei Feldern im Teslabereich signifikant wird. Ichikawa et al. [Ich82] stellten bei SiO_x ebenfalls einen Magnetfeldeffekt fest, der mit sinkender Temperatur zunahm.

¹z. B. Typ CS-401 von Lakeshore [Lak99].

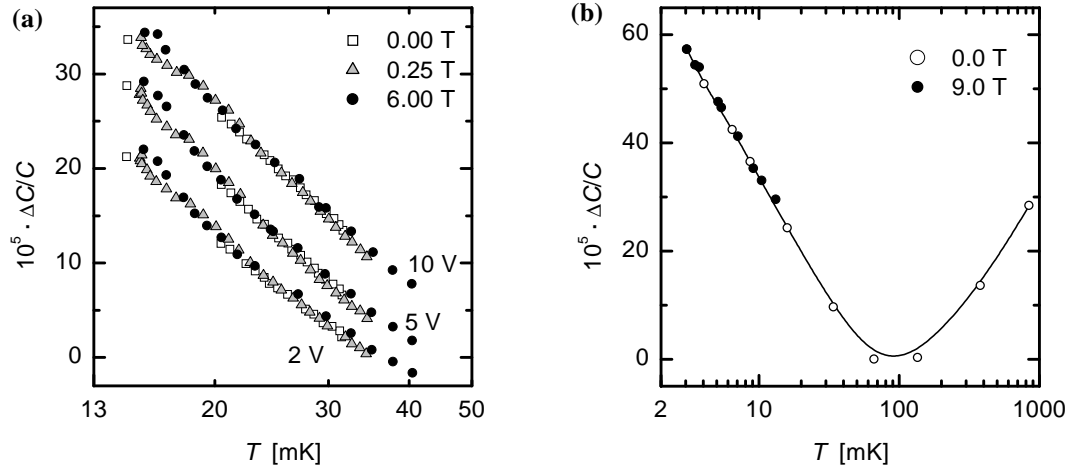


Bild 2.3: Temperaturabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung von Glaskapazitätsthermometern aus Spectrosil:

- (a) in Magnetfeldern von 0 T bis 6 T für drei verschiedene Anregungsspannungen. Nach [Rei86].
 (b) im Nullfeld und bei $B=9$ T. Nach [Wie87].

Reintjes et al. [Rei86] untersuchten einen Zylinderkondensator mit Dielektrikum aus Spectrosil und konnten keine Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität in Feldern bis 6 T feststellen (siehe Bild 2.3(a)). Die Untersuchungen wurde von Wiegers et al. [Wie87] fortgesetzt und auf Kondensatoren anderer Geometrien ausgedehnt. Diese Gruppe konnte ebenfalls keine Abhängigkeit der Kapazität von Magnetfeldern bis 9 T bei Temperaturen bis unter 5 mK feststellen (siehe Bild 2.3(b)).

2.2.2 Kapazitätsthermometer aus $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$

Bei Kieselglas werden die dielektrischen Eigenschaften hauptsächlich durch den Gehalt an Hydroxyl-Ionen bestimmt. Borosilikatgläser hingegen haben intrinsische Dipole, und eine wesentlich stärkere Temperaturempfindlichkeit der dielektrischen Funktion. Strehlow entwickelte deshalb einen Tieftempersensor auf Basis eines im Sol-gelprozeß hergestellten $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Glases [Str90b, Str90a, Str92] (siehe auch Abschnitt 4.6.2.1).

Dieses Glaskapazitätsthermometer wurde von Penning et. al. [Pen94, Pen95] im Magnetfeld bis 20 T untersucht (siehe Bild 2.4). Es wurde keine Abhängigkeit der Kapazität vom Magnetfeld gefunden. Allerdings streuen die Meßwerte stark und die gewählte Auftragung (Absolutwerte statt Differenzen) würde einen vorhandenen Effekt verschleiern. Zudem wurde zur Temperaturmessung ein *vibrating-wire*-Thermometer verwendet, bei dem mit Hilfe der Dämpfung eines schwingenden Drahtes die temperaturabhängige Viskosität der $^3\text{He-}^4\text{He}$ -Mischung gemessen wird. Da dieses Thermometer nur im Magnetfeld funktioniert, gibt es keine Nullfeld-Werte.

Demgegenüber fanden Strehlow, Enss und Hunklinger [Str98] bei Messungen der Ka-

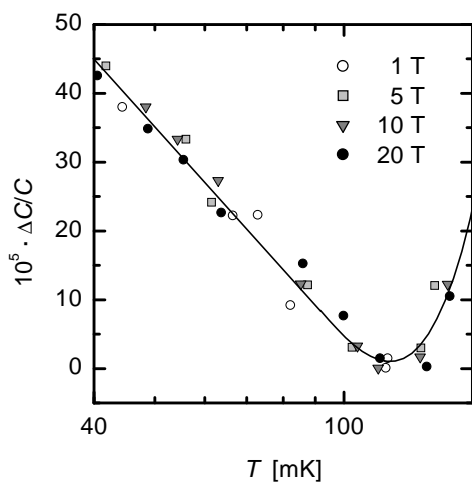


Bild 2.4: Temperaturabhängigkeit eines BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensors in Magnetfeldern von 1 T bis 20 T. Nach [Pen95].

pazität von BaO-Al₂O₃-SiO₂ Abhängigkeiten von Magnetfeldern. Dazu wurde ein BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensor, eingekapselt in einem Kupfergehäuse, im Feld einer kleinen Zylinderspule gemessen. Zur Abschirmung der Streufelder des eingesetzten Kernentmagnetisierungskryostaten war der Aufbau von einem Niobzylinder umgeben, in dem ein Teil des Erdmagnetfelds ($\approx 20 \mu\text{T}$) eingefroren war.

Im oberen Teil von Bild 2.2.2, Seite 10 ist die zeitliche Veränderung des Magnetfeldes $\delta B(t)$ aufgetragen. Der untere Teil zeigt die zeitliche relative Änderung der elektrischen Permittivität $\delta\epsilon'/\epsilon'$ der Probe für Temperaturen zwischen 11.1 mK und 0.72 mK. Bei einer Temperatur von 5 mK wird ein Einfluß des Magnetfeldes auf die Kapazität meßbar. Dieser Effekt ist bei 2.56 mK am stärksten und schwächt sich bei tieferen Temperaturen ab.

Dieses Verhalten war nach den bisherigen Untersuchungen von Glaskapazitätsthermometern im Magnetfeld völlig unerwartet. Auch thermodynamische Überlegungen (siehe Kapitel 3.1) können Abhängigkeiten der Kapazität von kleinsten Feldern nicht erklären. Eine Interpretationsmöglichkeit bieten die im Abschnitt 3.3.1 beschriebenen magnetischen Flußeffekte.

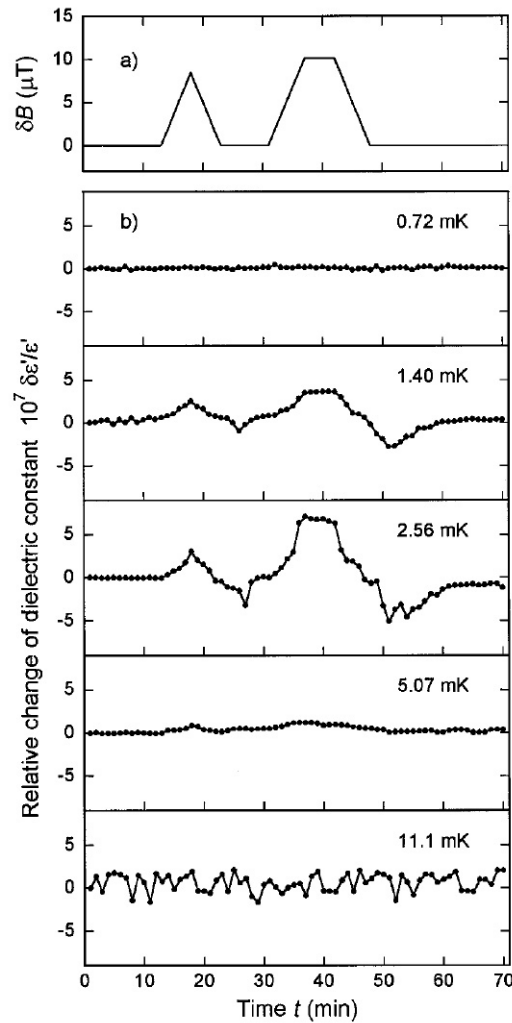


Bild 2.5: Einfluß eines kleinen Magnetfeldes auf die elektrische Permittivität eines BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensors. (a) Zeitliche Veränderung des Magnetfeldes. (b) Relative Änderung der elektrischen Permittivität mit der Variation des angelegten Magnetfeldes für Temperaturen zwischen 0.72 mK und 11.1 mK. Am Ort der Probe war zudem ein konstantes Magnetfeld von rund 20 μT vorhanden. Die Messung wurde mit einer Anregungsspannung von 0.75 V vorgenommen. Aus [Str98].

3 Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens von Gläsern

3.1 Thermodynamische Feldtheorie

Der makroskopische physikalische Zustand eines Körpers kann durch einige wenige Meßgrößen, den *makroskopischen Observablen*, definiert werden. Es ist das Ziel der thermodynamischen Feldtheorie [Tru60, Tru65], diese makroskopischen Observablen in jedem Punkt des Körpers und zu jeder Zeit zu bestimmen. Um dieses Ziel zu erreichen, bedient man sich der Bilanzgleichungen für die Erhaltungsgrößen von Masse, Impuls, Energie, elektrischer Ladung und magnetischem Fluß.

In diesen Bilanzgleichungen treten jedoch neue, unbekannte Materialgrößen auf, die durch Materialgleichungen mit den thermodynamischen Feldern der makroskopischen Observablen verknüpft werden müssen. Das Einsetzen der Materialgleichungen in die Bilanzgleichungen führt auf ein Feldgleichungssystem, dessen Lösungen für gegebene Anfangs- und Randwerte als *thermodynamischer Prozeß* bezeichnet werden. Allerdings gibt es in der kondensierten Materie keinen Stoff, für den die Materialgleichungen vollständig bekannt wären. Es ist daher die Aufgabe der thermodynamischen Materialtheorie, die Materialgleichungen durch allgemeine physikalische Prinzipien bis auf meßbare Materialfunktionen einzuschränken.

Ziel der nun folgenden Abschnitte ist es, Aussagen über die Abhängigkeit der Materialgrößen (speziell der Polarisierbarkeit) dielektrischer Gläser von den makroskopischen Observablen (speziell des elektrischen Feldes und der magnetischen Flußdichte) zu erhalten.

3.1.1 Felder und Bilanzgleichungen

Die Tieftemperatureigenschaften von Materialien werden außer mit spektroskopischen Methoden auch in akustischen, mechanischen, thermischen, dielektrischen und magnetischen Experimenten untersucht. Die makroskopischen Observablen in diesen Experi-

menten sind die Felder der

- Massendichte $\rho(\mathbf{X}, t)$,
 - Bewegung $\mathbf{x}(\mathbf{X}, t)$,
 - Temperatur $T(\mathbf{X}, t)$,
 - elektrischen Feldstärke $\mathcal{E}(\mathbf{X}, t)$ und
 - magnetischen Flußdichte $\mathbf{B}(\mathbf{X}, t)$.
- (3.1)

Alternativ können statt der Bewegung \mathbf{x} auch abgeleitete Größen wie der Deformationsgradient $F_{iA} = \partial x_i(\mathbf{X}, t)/\partial X_A$ oder die Geschwindigkeit $v_i = \partial x_i(\mathbf{X}, t)/\partial t$ verwendet werden.

Das Ziel ist es, die elf Komponenten der Felder (3.1) für alle Punkte eines materiellen Körpers mit den Lagrange-Koordinaten¹ \mathbf{X} und für alle Zeiten t zu bestimmen. Zur Bestimmung dieser Felder werden Feldgleichungen benötigt. Diese basieren auf den Bilanzgleichungen (Erhaltungssätzen) der Mechanik für Masse und Impuls, der Thermodynamik für Energie und der Elektrodynamik für Ladung und magnetischen Fluß (Maxwellsche Gleichungen). Es werden der Einfachheit halber nur Körper betrachtet, in denen weder Impuls noch Energie durch „Fernwirkung“ zugeführt werden. Es wirken damit keine Gravitationskräfte und das Beobachtersystem ist ein Inertialsystem. In regulären Punkten des materiellen Körpers lauten die Bilanzgleichungen in ihrer lokalen Form:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho v_j}{\partial x_j} = 0 \quad , \quad (3.2a)$$

$$\frac{\partial \rho v_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho v_i v_j - t_{ij}) = q \hat{\mathcal{E}}_i - \epsilon_{ijk} B_j \hat{\mathcal{J}}_k \quad , \quad (3.2b)$$

$$\frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho u v_j + q_j) = t_{ij} \frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \hat{\mathcal{J}}_i \hat{\mathcal{E}}_i \quad , \quad (3.2c)$$

$$-\epsilon_0 \frac{\partial \mathcal{E}_i}{\partial t} + \frac{1}{\mu_0} \epsilon_{ijk} \frac{\partial B_k}{\partial x_j} = \hat{\mathcal{J}}_i + q v_i \quad , \quad \epsilon_0 \frac{\partial \mathcal{E}_j}{\partial x_j} = q \quad , \quad (3.2d)$$

$$\frac{\partial B_i}{\partial t} + \epsilon_{ijk} \frac{\partial \mathcal{E}_k}{\partial x_j} = 0 \quad , \quad \frac{\partial B_j}{\partial x_j} = 0 \quad . \quad (3.2e)$$

Es wurden die Felder Spannungstensor \mathbf{t} , innere Energiedichte u , Wärmeflußdichte \mathbf{q} und Strom \mathbf{J} neu eingeführt. Mit einem „Dach“ bezeichnete Größen sind in einem mit der Geschwindigkeit \mathbf{v} bewegten System gemessen.

Meßvorschriften für die elektromagnetischen Felder ergeben sich aus der Kraft oder dem Moment, die sie auf eine elektrische Probeladung oder einen magnetischen Dipol

¹Bei der Lagrange-Notation beziehen sich die Koordinaten X_A auf einen materiellen Punkt des Körpers in einer beliebigen Referenzkonfiguration, $\mathbf{x}(\mathbf{X}, t)$ bezeichnet seine Bahnkurve.

ausüben. Für die elektrische Feldstärke (elektromotive Intensität) und die magnetische Flußdichte ergibt sich:

$$\widehat{\mathcal{E}}_i = \mathcal{E}_i + \epsilon_{ijk} v_j B_k , \quad (3.3a)$$

$$\widehat{B}_i = B_i . \quad (3.3b)$$

wenn \mathbf{E} und \mathbf{B} im Inertialsystem gemessen werden. Die Ladungsdichte $q = \widehat{q}$ setzt sich aus der Ladungsdichte der freien Ladungsträger q^F und der Polarisierungsladungsdichte zusammen:

$$q = q^F - \frac{\partial P_i}{\partial x_i} \quad (3.4)$$

Die Polarisierbarkeit \mathbf{P} ergibt sich aus der Zahldichte der Dipole n_p und ihrem Dipolmoment \mathbf{p} mit der Ladung Q und dem Abstandsvektor \mathbf{d} zwischen den Ladungen:

$$\mathbf{P} = n_p \mathbf{p} = n_p Q \mathbf{d} . \quad (3.5)$$

Der nichtkonvektive Strom ist gegeben durch:

$$\widehat{\mathbf{J}} = \mathbf{J} - q \mathbf{v} , \quad (3.6)$$

und setzt sich zusammen aus dem Strom der freien Ladungsträger $\widehat{\mathbf{J}}^F$, dem Polarisierungsstrom und dem Magnetisierungsstrom,

$$\widehat{J}_i = \widehat{J}_i^F + \frac{\partial P_i}{\partial t} + v_i \frac{\partial P_m}{\partial x_m} + \epsilon_{ijk} \frac{\partial}{\partial x_j} (M_k + \epsilon_{klm} P_l v_m) . \quad (3.7)$$

Die Magnetisierbarkeit \mathbf{M} ergibt sich aus der Zahldichte der magnetischen Dipole n_m und ihrem magnetischem Moment \mathbf{m} :

$$\mathbf{M} = n_m \mathbf{m} = n_m I \mathbf{F} , \quad (3.8)$$

wenn I einen Kreisstrom in der geschlossenen orientierten Fläche \mathbf{F} bezeichnet.

Die Bilanzgleichungen in der Form (3.2) können noch nicht als Feldgleichungen dienen, da sie die unbekanntten Felder der spezifischen inneren Energie u , des Spannungstensors \mathbf{t} , des Wärmeflusses \mathbf{q} , der Polarisierbarkeit \mathbf{P} und der Magnetisierbarkeit \mathbf{M} enthalten. Man beachte, daß die Temperatur überhaupt nicht auftritt.

3.1.2 Thermodynamische Materialtheorie

Um Feldgleichungen zu erhalten, benötigt man Materialgleichungen, welche die Materialgrößen

$$C \in \{u, \mathbf{t}, \mathbf{q}, \mathbf{P}, \mathbf{M}\} \quad (3.9)$$

zu den thermodynamischen Feldern (3.1) in Beziehung setzen. Nach dem Prinzip des Determinismus [Tru65] sind die Materialgrößen $C(\mathbf{x}, t)$ mit den Feldern (3.1) in allen

Punkten des Körpers \mathbb{B} und zu allen vorangegangenen Zeiten $(t - s)$, $s \geq 0$ in materialabhängiger Weise verknüpft:

$$C(\mathbf{x}, t) = \underset{\substack{\infty \\ s=0 \\ \mathbf{x} \in \mathbb{B}}}{\mathcal{C}} (\rho(\mathbf{X}, t-s), \mathbf{x}(\mathbf{X}, t-s), T(\mathbf{X}, t-s), \boldsymbol{\mathcal{E}}(\mathbf{X}, t-s), \mathbf{B}(\mathbf{X}, t-s)). \quad (3.10)$$

Durch das Materialfunktional \mathcal{C} können nichtlokale Effekte eines Körpers mit unbegrenztem Gedächtnis beschrieben werden.

Könnten die Materialgleichungen (3.10) theoretisch oder experimentell bestimmt werden, ergäbe sich durch Einsetzen von (3.10) in die Bilanzgleichungen (3.2) ein Feldgleichungssystem, dessen Lösung für spezielle Anfangs- und Randwerte die Bestimmung der thermodynamischen Felder (3.1) erlaubten. Um die spezielle Form der Materialbeziehungen (3.10) einzuschränken, bedient man sich in der thermodynamischen Materialtheorie allgemeiner physikalischer Prinzipien. Diese sind im wesentlichen

- die Forderung nach Invarianz der Feldgleichungen unter euklidischen Transformationen,
- die Auswertung von Isotropieeigenschaften und
- das Entropieprinzip.

3.1.2.1 Einfache magnetisierbare Dielektrika

In einem einfachen magnetisierbaren Dielektrikum ($q^F = 0, \widehat{\mathbf{J}}^F = 0$) hängen die Materialgrößen (3.9) eines materiellen Teilchens \mathbf{X} nicht von den Geschichten der Observablen (3.1) im ganzen Körper ab, sondern nur von den Geschichten der Felder dieses und der unmittelbar benachbarten Teilchen.

Außerdem kann durch Integration der Massenbilanz (3.2a) eine Beziehung zwischen der Massendichte ρ und der Determinante des Deformationsgradienten \mathbf{F} erhalten werden:

$$\rho = \frac{\rho_R}{|\det \mathbf{F}|}, \quad (3.11)$$

wobei die Integrationskonstante ρ_R gleich der Massendichte in der Referenzkonfiguration ist. Dadurch braucht die Dichte in den Materialgleichungen nicht berücksichtigt zu werden und diese vereinfachen sich:

$$C(\mathbf{x}, t) = \underset{s=0}{\mathcal{C}} \left(\mathbf{x}(\mathbf{X}, t-s), \mathbf{F}(\mathbf{X}, t-s), T(\mathbf{X}, t-s), \frac{\partial T(\mathbf{X}, t-s)}{\partial \mathbf{X}}, \boldsymbol{\mathcal{E}}(\mathbf{X}, t-s), \mathbf{B}(\mathbf{X}, t-s) \right) \quad (3.12)$$

In dieser Gleichung wurden die Gradienten der Dichte, der elektrischen Feldstärke und der magnetischen Flußdichte nicht berücksichtigt. Dies ist eine Abweichung in der Systematik der Materialtheorie, die durch die Erfahrung gerechtfertigt werden kann.

3.1.2.2 Das Prinzip der materiellen Objektivität

Eine euklidische Transformation transformiert die Koordinaten x_i in ein neues System x_i^* folgendermaßen:

$$x_i^* = O_{ij}(t) x_j + b_i(t) , \quad (3.13)$$

mit der orthogonalen Drehmatrix \mathbf{O} und dem Lagevektor des alten Koordinatenursprungs² im neuen System $\mathbf{b}(t)$. Die thermodynamischen Felder (3.1) transformieren sich gemäß:

$$\rho^* = \rho , \quad (3.14a)$$

$$x_i^* = O_{ij}(t) x_j + b_i(t) , \quad (3.14b)$$

$$T^* = T , \quad (3.14c)$$

$$\mathcal{E}_i^* = O_{il} \left(\mathcal{E}_l + \epsilon_{lmn} \left(O_{jm} (-W_{jk} (x_k^* - b_k) - \dot{b}_j) \right) B_n \right) \text{ und} \quad (3.14d)$$

$$B_i^* = \det(\mathbf{O}) O_{ip} B_p , \quad (3.14e)$$

worin $W_{ik} = \dot{O}_{ij} O_{kj}$ die Matrix der Winkelgeschwindigkeit ist. Entsprechend (3.14d,e) ist \mathbf{B} ein axialer³ Vektor, während sich \mathcal{E} in komplizierter Weise transformiert. Es ist jedoch

$$\mathcal{E}_i^* + \epsilon_{ijk} v_j^* B_k^* = O_{il} (\mathcal{E}_l + \epsilon_{ljk} v_j B_k) = O_{il} \widehat{\mathcal{E}}_l , \quad (3.15)$$

wonach die elektromotive Intensität $\widehat{\mathcal{E}}$ ein polarer Vektor ist. Offenbar ist $\widehat{\mathcal{E}}$ im Ruhesystem des Teilchens gleich dem elektrischen Feld.

Wenn die Materialfunktionale für das Bezugssystem charakteristische Funktionen $\mathbf{O}(t)$ und $\mathbf{b}(t)$ enthalten, dann haben die Materialfunktionale im Nicht-Inertialsystem eine andere Bedeutung als im Inertialsystem. Dies widerspricht jedoch der Beobachtung. Das *Prinzip der materiellen Objektivität* [Tru65] besagt daher, daß die Materialfunktionale in *jedem* euklidischem System die gleiche Form haben ($\mathcal{C}^* = \mathcal{C}$). Daraus ergibt sich, daß die Materialgrößen nicht von den einzelnen Observablen \mathbf{x} und \mathcal{E} abhängen können, sondern nur von der Kombination $\widehat{\mathcal{E}} = \mathcal{E} + \dot{\mathbf{x}} \times \mathbf{B}$.

Weitere Einschränkungen an die Materialfunktionale ergeben sich aus dem polaren Zerlegungstheorem $F_{iA} = R_{iB} U_{BA}$, in dem die orthogonale Matrix \mathbf{R} die im Deformationsgradienten enthaltenen Drehungen repräsentiert und die symmetrische positiv definite Matrix \mathbf{U} die Längenänderungen. Es zeigt sich, daß die innere Energie u von dem Drehanteil \mathbf{R} des Deformationsgradienten unabhängig ist. Die vektoriellen und tensoriellen Materialgrößen hängen hingegen explizit von diesem ab.

²Eigentlich müssten die Drehmatrix und der Lagevektor mit \mathbf{O}^* , \mathbf{b}^* bezeichnet werden, da sie im neuen Koordinatensystem angegeben sind. Die Sterne wurden aus Gründen der Übersichtlichkeit weggelassen.

³Ein *axialer* Vektor transformiert sich wie $\mathbf{v}^* = \det(\mathbf{O}) \mathbf{O} \mathbf{v}$, ein *polarer* Vektor hingegen wie $\mathbf{v}^* = \mathbf{O} \mathbf{v}$.

3.1.2.3 Materialgleichungen für isotrope Körper

Vollständige Unordnung, wie sie in Flüssigkeiten und Gläsern gegeben ist, bedeutet Isotropie bezüglich aller Rotationen und aller unimodularen Transformationen⁴. Zusammen mit dem Prinzip der materiellen Objektivität ergeben sich für isotrope Körper weitere Einschränkungen an die Materialfunktionale. Betrachtet man nur homogene Deformationen⁵ und hängen die Materialgrößen nicht von der Geschichte der makroskopischen Observablen ab, dann gehen die Materialfunktionale in Materialfunktionen über, für die gelten muß:

$$u\left(\rho, T, O_{kl} \frac{\partial T}{\partial x_l}, O_{kl} \hat{\mathcal{E}}_l, (\det \mathbf{O}) O_{kl} B_l\right) = u\left(\rho, T, \frac{\partial T}{\partial x_k}, \hat{\mathcal{E}}_k, B_k\right), \quad (3.16a)$$

$$t_{ij}(\dots) = O_{in} O_{jm} t_{nm}(\dots), \quad (3.16b)$$

$$q_i(\dots) = O_{in} q_n(\dots), \quad (3.16c)$$

$$P_i(\dots) = O_{in} P_n(\dots), \quad (3.16d)$$

$$M_i(\dots) = (\det \mathbf{O}) O_{in} M_n(\dots). \quad (3.16e)$$

Funktionen, welche den Bedingungen (3.16) genügen, heißen isotrope Funktionen bezüglich orthogonaler Transformationen. Ihre Gleichgewichtswerte ($\partial T / \partial x_i = 0$) sind in voller Allgemeinheit gegeben durch⁶:

$$u = u\left(\rho, T, \hat{\mathcal{E}}_i \hat{\mathcal{E}}_i, B_i B_i, (\hat{\mathcal{E}}_i B_i)^2\right), \quad (3.17a)$$

$$t_{ij} = \alpha_1 \delta_{ij} + \alpha_2 B_i B_j + \alpha_3 \hat{\mathcal{E}}_i \hat{\mathcal{E}}_j + \alpha_4 \hat{\mathcal{E}}_{(i} \epsilon_{j)kl} B_k \hat{\mathcal{E}}_l + \alpha_5 B_n \hat{\mathcal{E}}_n \hat{\mathcal{E}}_{(i} B_{j)} + \alpha_6 B_n \hat{\mathcal{E}}_n B_{(i} \epsilon_{j)kl} B_k \hat{\mathcal{E}}_l, \quad (3.17b)$$

$$q_i = (\beta_1 \delta_{ik} + \beta_2 \epsilon_{ijk} B_j + \beta_3 B_i B_k) \hat{\mathcal{E}}_k, \quad (3.17c)$$

$$P_i = \epsilon_0 (\chi_1 \delta_{ik} + \chi_2 \epsilon_{ijk} B_j + \chi_3 B_i B_k) \hat{\mathcal{E}}_k \text{ und} \quad (3.17d)$$

$$M_i = \gamma_1 B_i + \left(\gamma_2 B_n \hat{\mathcal{E}}_n \delta_{ik} + \gamma_3 (B_n \hat{\mathcal{E}}_n) \epsilon_{ijk} B_j\right) \hat{\mathcal{E}}_k. \quad (3.17e)$$

Alle Koeffizienten $\alpha_{1\dots 6}$, $\beta_{1\dots 3}$, $\chi_{1\dots 3}$ und $\gamma_{1\dots 3}$ können noch von den skalaren Invarianten in 3.17a abhängen.

3.1.2.4 Auswertung des Entropieprinzips

Nach dem Entropieprinzip [Mül85] gibt es eine Bilanzgleichung

$$\frac{\partial \rho \eta}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \eta v_i + \Phi_i) \geq 0, \quad (3.18)$$

⁴Transformationen, unter denen die Dichte konstant bleibt.

⁵Die Deformation ist durch $\det \mathbf{F}$ oder die Massendichte ρ bestimmt.

⁶Die Notation $\hat{\mathcal{E}}_{(i} \epsilon_{j)kl}$ bezeichnet den symmetrischen Anteil von $\hat{\mathcal{E}}_i \epsilon_{jkl}$ bezüglich i und j .

in der die Entropie $\eta(\rho, T, \partial T/\partial x_i, \widehat{\mathcal{E}}_i, B_i)$ und der Entropiefluß $\Phi(\rho, T, \partial T/\partial x_i, \widehat{\mathcal{E}}_i, B_i)$ durch Materialgleichungen gegeben sind. Diese Ungleichung muß für jeden thermodynamischen Prozeß erfüllt sein. Die Aussage des Entropieprinzips läßt sich in der Gibbs'schen Gleichung zusammenfassen:

$$Td\eta = de + \frac{1}{3\rho^2} \left(t_{ii} - \widehat{\mathcal{E}}_i P_i - 2B_i M_i \right) d\rho + \frac{P_i}{\rho} d\widehat{\mathcal{E}}_i + \frac{M_i}{\rho} dB_i, \quad (3.19)$$

mit $e := u - \rho^{-1} \widehat{\mathcal{E}}_m P_m$. Die aus (3.19) folgenden Integrierbarkeitsbedingungen führen zu folgenden Einschränkungen für die Koeffizienten der Gleichungen (3.17):

$$\begin{aligned} \alpha_4 = \alpha_5 = \alpha_6 = \chi_2 = \gamma_3 = 0, \\ \gamma_2 = \epsilon_0 \chi_3, \alpha_2 = -\gamma_1 \quad \text{und} \quad \alpha_3 = \epsilon_0 \chi_1. \end{aligned}$$

Damit erhält man für die Materialgrößen im Gleichgewicht:

$$P_i = \epsilon_0 \chi_1 \widehat{\mathcal{E}}_1 + \gamma_2 B_k \widehat{\mathcal{E}}_k B_i, \quad (3.20a)$$

$$M_i = \gamma_1 B_i + \gamma_2 B_k \widehat{\mathcal{E}}_k \widehat{\mathcal{E}}_i \quad \text{und} \quad (3.20b)$$

$$t_{ij} = \alpha_1 \delta_{ij} - \gamma_1 B_i B_j + \epsilon_0 \chi_1 \widehat{\mathcal{E}}_i \widehat{\mathcal{E}}_j. \quad (3.20c)$$

3.1.3 Ergebnisse und Folgerungen aus der thermodynamischen Feldtheorie

Im folgenden Abschnitt werden die im vorangegangenen Abschnitt 3.1.2 gewonnenen allgemeinen Beziehungen auf die Beschreibung der Magnetfeldabhängigkeit eines Glaskapazitätssensors angewendet.

3.1.3.1 Die Abhängigkeit der Polarisierbarkeit vom Magnetfeld

Zur Beschreibung der Magnetfeldabhängigkeit eines Glaskapazitätssensors betrachtet man einen Plattenkondensator mit Querschnittsfläche A und Plattenabstand d im Ruhesystem. Das elektrische Feld $\mathbf{E} = (0, 0, \mathcal{E})$ und die Polarisation $\mathbf{P} = (0, 0, P)$ stehen senkrecht zu den Kondensatorplatten. Für die Ladung des Kondensators $Q = C\mathcal{E}d$ folgt dann aus (3.20a):

$$\frac{Q}{A} = \epsilon_0 \mathcal{E} + P = \epsilon_0 \left(1 + \chi_1 + \frac{\gamma_2 B_z^2}{\epsilon_0} \right) \mathcal{E}, \quad (3.21)$$

und damit für die Kapazität:

$$C = \frac{\epsilon_0 \left(1 + \chi_1 + \frac{\gamma_2 B_z^2}{\epsilon_0} \right) A}{d}. \quad (3.22)$$

Da χ_1 und γ_2 im allgemeinen Funktionen der Invarianten $\rho, T, \mathcal{E}^2, B_i B_i$ und $(B_z \mathcal{E})^2$ sind, wird eine quadratische Abhängigkeit der Kapazität vom Magnetfeld erwartet. Sind elektrisches und magnetisches Feld parallel, dann ergibt sich zusätzlich eine B^4 -Abhängigkeit. Die quadratische Abhängigkeit der Kapazität vom Magnetfeld konnte – wie in Abschnitt 2.2.1 beschrieben – experimentell beobachtet werden [Nau83], siehe Bild 2.2, und folgt auch aus kinetischen Theorien, z. B. [Buc57].

Die Magnetfeldabhängigkeiten der Kapazität sind für viele Materialien allerdings klein und lassen sich demzufolge erst in hohen Magnetfeldern beobachten. Daher kann man die meisten Dielektrika in einer *linearen* Theorie beschreiben, für die dann

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi_1 \mathbf{E} \quad \text{mit} \quad \chi_1 = \chi_1(\rho, T), \quad (3.23)$$

und damit keine Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität erwartet wird. Dieses Verhalten konnte ebenfalls von verschiedenen Arbeitsgruppen bestätigt werden, zu den Experimenten siehe Abschnitt 2.2.1.

3.1.3.2 Zur Magnetisierbarkeit isotroper Dielektrika

Mit der aus der Gibbs-Gleichung (3.19) erhaltenen Integrabilitätsbedingung:

$$\frac{\partial M_i}{\partial \hat{\mathcal{E}}_i} = \frac{\partial P_i}{\partial B_i}, \quad (3.24)$$

folgt, daß eine nichtlineare Magnetfeldabhängigkeit der Polarisierbarkeit nach (3.20a,b) auch mit einer Abhängigkeit der Magnetisierbarkeit vom elektrischen Feld $\hat{\mathbf{E}}$ verbunden ist.

Obwohl systematische Untersuchungen der elektrischen Feldabhängigkeit der Magnetisierbarkeit von Gläsern bei ultratiefen Temperaturen ($T < 100$ mK) noch nicht durchgeführt wurden, weisen Messungen an Borosilikatgläsern darauf hin, daß die elektronischen Momente der Verunreinigungen (z. B. Fe^{3+}) zu einem ideal paramagnetischen Verhalten der Gläser führen [Her00a, Sie01]. Die Magnetisierbarkeit ist dann gegeben durch:

$$M_i = n_m J g \mu_B B_J(x) \frac{B_i}{B} \quad \text{mit} \quad x := \frac{g \mu_B J B}{k_B T}, \quad (3.25)$$

hierbei bezeichnet J die Gesamtdrehimpulsquantenzahl, g den Landéschen Faktor, μ_B das Bohrsche Magneton und $B_J(x)$ die Brillouinfunktion:

$$B_J(x) := \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{(2J+1)x}{2J}\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{x}{2J}\right). \quad (3.26)$$

Im Grenzfall $x \ll 1$ ergibt sich das *Curie-Gesetz* für die magnetische Suszeptibilität χ_m , ($\mathbf{M} = \mu_0^{-1} \chi_m \mathbf{B}$):

$$\chi_m = \rho \frac{\mu_0 N_A g^2 \mu_B^2 J(J+1)}{3 k_B M_{\text{mol}}} \frac{1}{T}. \quad (3.27)$$

Die Gültigkeit des Curie-Gesetzes konnte für Mehrkomponentengläser (BaO-Al₂O₃-SiO₂ und Duran) bis zu Temperaturen von 300 μ K nachgewiesen werden [Her00a, Sie01]. Aus einem ideal paramagnetischen Verhalten folgt dann mit (3.24) wiederum, daß die Polarisierbarkeit nicht vom Magnetfeld abhängen sollte.

Darüber hinaus ergeben sich weitere Aussagen für den Spannungstensor im Gleichgewicht (3.20c). Dieser ist durch die Integrabilitätsbedingungen der Entropie in (3.19),

$$3\rho^2 \frac{\partial \left(\frac{M_i}{\rho} \right)}{\partial \rho} - \frac{\partial t_{rr}}{\partial B_i} + \hat{\mathcal{E}}_r \frac{\partial P_r}{\partial B_i} + 2 \frac{\partial (M_r B_r)}{\partial B_i} = 0, \quad (3.28a)$$

$$3\rho^2 \frac{\partial \left(\frac{P_i}{\rho} \right)}{\partial \rho} - \frac{\partial t_{rr}}{\partial \hat{\mathcal{E}}_i} + 2B_r \frac{\partial M_r}{\partial \hat{\mathcal{E}}_i} + \frac{\partial (P_r \hat{\mathcal{E}}_r)}{\partial \hat{\mathcal{E}}_i} = 0, \quad (3.28b)$$

bis auf den hydrostatischen Druck $p(\rho, T)$ bestimmt zu:

$$t_{ij} = \left\{ -p(\rho, T) + \frac{2}{3}\gamma_1 B^2 + \frac{1}{3}\epsilon_0 \chi_1 \hat{\mathcal{E}}^2 + \gamma_2 (\mathbf{B} \cdot \hat{\mathcal{E}})^2 + \frac{\rho^2}{4} \frac{\partial}{\partial \rho} \left[\int_0^{B^2} \left(\frac{\gamma_1}{\rho} + \frac{\gamma_1}{\rho} \Big|_{\hat{\mathcal{E}}^2=0} \right) dB^2 \right. \right. \\ \left. \left. + \int_0^{\hat{\mathcal{E}}^2} \left(\frac{\epsilon_0 \chi_1}{\rho} + \frac{\epsilon_0 \chi_1}{\rho} \Big|_{B^2=0} \right) d\hat{\mathcal{E}}^2 + 2 \int_0^{(\mathbf{B} \cdot \hat{\mathcal{E}})^2} \frac{\gamma_2}{\rho} \Big|_{\substack{B^2=0 \\ \hat{\mathcal{E}}^2=0}} d(\mathbf{B} \cdot \hat{\mathcal{E}})^2 \right] \right\} \delta_{ij} \\ - \gamma_1 \left(B_i B_j - \frac{1}{3} B^2 \delta_{ij} \right) + \epsilon_0 \chi_1 \left(\hat{\mathcal{E}}_i \hat{\mathcal{E}}_j - \frac{1}{3} \hat{\mathcal{E}}^2 \delta_{ij} \right). \quad (3.29)$$

Da für einen ideal paramagnetischen Körper die spezifische Magnetisierung von der Massendichte unabhängig ist, tritt in diesen Materialien keine Magnetostriktion (Abhängigkeit der Magnetisierung von der Spannung) auf. Für den in Abschnitt 3.1.3.1 betrachteten Kondensator mit $\mathbf{B} = (B, 0, 0)$ reduziert sich Gleichung (3.29) auf die Form:

$$t_{ij} = -p(\rho, T) \delta_{ij} + \gamma_1 B^2 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + \epsilon_0 \chi_1 \mathcal{E}^2 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad (3.30)$$

mit der zusätzlichen Annahme $\partial(\chi_1/\rho)/\partial\rho = 0$. Neben den magnetischen Spannungen senkrecht zur magnetischen Flußdichte und den elektrischen Spannungen in Richtung des elektrischen Feldes treten in Materialien, in denen die spezifische Magnetisierung und Polarisierbarkeit unabhängig von der Massendichte sind, keine Magnetostriktion und Elektrostriktion auf.

Aus dieser und der im vorigen Abschnitt abgeleiteten Unabhängigkeit der Polarisierbarkeit vom Magnetfeld folgt, daß für ein lineares, isotropes und ideal paramagnetisches Dielektrikum die gemessene Kapazität (3.22) *nicht* vom Magnetfeld abhängen sollte.

3.1.4 Dielektrische Relaxation

In einer linearen Theorie kann der Zusammenhang zwischen Polarisierbarkeit und elektrischem Feld (3.23) verallgemeinert werden. Dazu wird für eine deltafunktionsförmige Anregung $\mathbf{E}\Delta t$ eine Antwortfunktion $g(t)$ entsprechend:

$$\mathbf{P}(t) = \epsilon_0(\mathbf{E}\Delta t)g(t) , \quad (3.31)$$

definiert. Die Kausalität erfordert, daß

$$g(t) = 0 \quad \text{für alle } t < 0 . \quad (3.32)$$

Außerdem sollen Systeme betrachtet werden, in denen es keine permanente Polarisierung gibt, d. h. $g(t \rightarrow \infty) = 0$. Nach dem Superpositionsprinzip, das Boltzmann [Bol74] auf die elastische Nachwirkung von Glasfasern anwandte, ergibt sich eine zeitabhängige Polarisierbarkeit zu:

$$\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \int_0^\infty g(s)\mathbf{E}(t-s)ds . \quad (3.33)$$

Die Nachwirkungsdarstellung (3.33) ist eine spezielle Form der Materialgleichung (3.12) für lineare Dielektrika. Die dielektrische Verschiebung $\mathbf{D}(t)$ enthält einen Teil, der dem Feld praktisch unverzögert folgt und für Frequenzen unterhalb des Infrarotbereichs durch die elektronische und ionische Polarisierbarkeit $\epsilon_0\epsilon_r^\infty\mathbf{E}(t)$ gegeben ist, sowie die zeitabhängige Polarisierbarkeit (3.33). Es gilt dann:

$$\mathbf{D}(t) = \epsilon_0\epsilon_r^\infty\mathbf{E}(t) + \epsilon_0 \int_0^\infty g(s)\mathbf{E}(t-s)ds . \quad (3.34)$$

Differentiation von (3.34) führt unter Beachtung von $g(t \rightarrow \infty) = 0$ auf:

$$\frac{d\mathbf{D}}{dt} = \epsilon_0\epsilon_r^\infty \frac{d\mathbf{E}}{dt} + \epsilon_0 g(0)\mathbf{E} + \epsilon_0 \int_0^\infty \frac{dg(s)}{ds}\mathbf{E}(t-s)ds . \quad (3.35)$$

Unter der Annahme einer exponentiellen Zeitabhängigkeit der Antwortfunktion,

$$g(s) = g(0) e^{-\frac{s}{\tau}} , \quad (3.36)$$

ergibt sich die dynamische Zustandsgleichung für lineare Dielektrika:

$$\left(1 + \tau \frac{d}{dt}\right) \mathbf{D} = \epsilon_0 \left(\epsilon_r + \epsilon_r^\infty \tau \frac{d}{dt}\right) \mathbf{E} , \quad (3.37)$$

wobei

$$g(0)\tau = \epsilon_r - \epsilon_r^\infty . \quad (3.38)$$

Für eine harmonische Anregung des elektrischen Feldes $\mathbf{E}(t) = \mathcal{E}_0 e^{i\omega t}$ folgt mit dem Lösungsansatz $\mathbf{D}(t) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega) e^{i\omega t}$ aus (3.37) die *Debye-Gleichung*:

$$\epsilon_r(\omega) = \frac{\epsilon_r - \epsilon_r^\infty}{1 + i\omega\tau} + \epsilon_r^\infty, \text{ somit} \quad (3.39a)$$

$$\epsilon_r(\omega) = \epsilon_r' + i\epsilon_r'' = \epsilon_r^\infty + \frac{\epsilon_r - \epsilon_r^\infty}{1 + \omega^2\tau^2} - i \frac{(\epsilon_r - \epsilon_r^\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2}. \quad (3.39b)$$

Dielektrische Relaxationserscheinungen linearer Dielektrika lassen sich dadurch charakterisieren, daß die relative Permittivität ϵ_r bei harmonischer Einwirkung entsprechend (3.39) frequenzabhängig erscheint.

Allgemein können akustische, elastische, magnetische und dielektrische Relaxationserscheinungen durch Ratengleichungen für die Übergänge zwischen den inneren Zuständen eines Systems beschrieben werden [Kro38]. In der Thermodynamik genügt es, die Existenz von molekularen Relaxationserscheinungen anzunehmen und dann die Methoden der linearen irreversiblen Thermodynamik darauf anzuwenden. Die dielektrische Relaxation isotroper Dielektrika wird dann durch die verzögerte Einstellung einer inneren Variable ξ bestimmt. Was immer die physikalische Natur der inneren Variablen ist, ihr Wert sollte alle Materialgrößen und insbesondere die Entropie beeinflussen. Es gilt dann die verallgemeinerte Gibbs'sche Gleichung entsprechend (3.19):

$$T \frac{d\eta}{dt} = \frac{du}{dt} + \frac{1}{\rho} P \cdot \frac{d\mathcal{E}}{dt} + A \frac{d\xi}{dt}, \quad (3.40)$$

worin A eine Affinität bezeichnet und das elektrische Feld $\mathbf{E} = (0, 0, \mathcal{E})$ und die Polarisation $\mathbf{P} = (0, 0, P)$ in z -Richtung angenommen werden. Mittels des 1. Hauptsatzes läßt sich (3.40) zu einer Entropiebilanz umschreiben:

$$\frac{dS}{dt} + \frac{\dot{Q}}{T} = \frac{mA}{T} \frac{d\xi}{dt}, \quad (3.41)$$

mit der Entropie S und der Wärmeleistung \dot{Q} . Aufgrund der Bedingung:

$$\frac{dS}{dt} \geq \frac{1}{T} \frac{dQ}{dt}, \quad (3.42)$$

muß die Entropieproduktion nicht-negativ sein, daraus folgt:

$$A \frac{d\xi}{dt} \geq 0. \quad (3.43)$$

Die Bedingung (3.43) läßt sich durch einen linearen Ansatz erfüllen:

$$\frac{d\xi}{dt} = \alpha A, \quad \alpha \geq 0. \quad (3.44)$$

Im Gleichgewicht ($d\xi/dt = 0$) ist auch $A = 0$. Für *isotherme Prozesse* ($dT/dt = 0$) folgt aus (3.40) für die spezifische freie Energie $f = u - T\eta$:

$$\frac{df}{dt} = -\frac{1}{\rho}P\frac{d\xi}{dt} - A\frac{d\xi}{dt}, \quad (3.45)$$

und die Polarisierbarkeit P und Affinität A ergeben sich für kleine Abweichungen vom Gleichgewichtszustand aus einer Taylor-Entwicklung der freien Energie zu:

$$P = \epsilon_0\chi_\infty\mathcal{E} + \beta\xi, \quad (3.46a)$$

$$-A = \frac{\beta}{\rho}\mathcal{E} + \delta\xi. \quad (3.46b)$$

Insbesondere ist χ_∞ die Suszeptibilität für schnell veränderliche Prozesse, bei denen $\xi = 0$ ist. Durch Eliminieren von A und ξ aus (3.46) mittels (3.43) erhält man die dynamische Zustandsgleichung für die Polarisierbarkeit:

$$\left(1 + \tau\frac{d}{dt}\right)P = \epsilon_0\left(\chi_\infty - \frac{1}{\epsilon_0\rho\delta} + \tau\chi_\infty\frac{d}{dt}\right)\mathcal{E}, \quad (3.47)$$

worin $\tau = 1/\alpha\delta$ die Relaxationszeit bezeichnet. Mit

$$\epsilon_r^\infty = 1 + \chi_\infty \quad \text{und} \quad \epsilon_r - \epsilon_r^\infty = \frac{1}{\epsilon_0\rho}\frac{\beta}{\delta}, \quad (3.48)$$

folgt wiederum die dynamische Zustandsgleichung (3.37) für die dielektrische Verschiebung $\mathbf{D} = \epsilon_0\mathcal{E} + \mathbf{P}$.

Im linearen Fall ist die Beschreibung der dielektrischen Relaxation durch eine Funktionaldarstellung der Polarisierbarkeit mit einer exponentiellen Antwortfunktion *äquivalent* zu der Einführung einer skalaren inneren Variablen, die einer Ratengleichung genügt.

3.1.5 Zusammenfassung der Ergebnisse aus der thermodynamischen Materialtheorie

Die voranstehenden themodynamischen Überlegungen zur Messung der dielektrischen Eigenschaften eines Plattenkondensators unter Einfluß eines Magnetfeld lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Für isotrope Dielektrika folgt eine quadratische Abhängigkeit der Kapazität vom Magnetfeld, siehe (3.22).
- Falls isotrope Dielektrika in linearer Theorie betrachtet werden können, wird keine Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität erwartet, siehe (3.23).

-
- Falls das Dielektrikum zusätzlich ideal paramagnetisches Verhalten zeigt, gibt es keine Magnetostriktion, Gleichung (3.30). Das heißt insbesondere, daß es keinen Volumeneffekt durch das Magnetfeld im Dielektrikum gibt.
 - In linearer Theorie folgt unter der Annahme einer harmonischen Anregung die Debye-Gleichung (3.39).
 - Im linearen Fall ist die Beschreibung der dielektrischen Relaxation durch eine Funktionaldarstellung der Polarisierbarkeit mit einer exponentiellen Antwortfunktion *äquivalent* zu der Einführung einer skalaren inneren Variablen, die einer Raten-gleichung genügt.

Um die Temperaturabhängigkeit $\epsilon_r(T)$ zu erhalten, sind Messungen oder Modelle erforderlich. Das universell bei Gläsern beobachtete anomale Tieftemperaturverhalten (siehe Abschnitt 1) kann mit dem im Folgenden beschriebenen Tunnelmodell erklärt werden.

3.2 Das Standardtunnelmodell

Zur Beschreibung der in Kapitel 1 skizzierten ungewöhnlichen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern wurde 1972 von Anderson, Halperin, Varma [And72] und Phillips [Phi72] das *Tunnelmodell* postuliert. Bei diesem Modell wird davon ausgegangen, daß in amorphen Materialien Atome oder Atomgruppen energetisch leicht unterschiedliche Gleichgewichtslagen einnehmen können, die durch Potentialbarrieren getrennt sind. Diese Barrieren können bei höheren Temperaturen durch thermisch aktivierte Prozesse überwunden werden. Bei tiefen Temperaturen hingegen wird der Wechsel zwischen den Potentialmulden durch Tunnelprozesse dominiert.

3.2.1 Beschreibung durch Zweiniveausysteme

Die mathematische Beschreibung [Jäc72, Jäc76, Phi87] nimmt vereinfachend an, daß das Potential aus zwei harmonischen Teilpotentialen zusammengesetzt ist. Diese Vereinfachung ist hinsichtlich der Berechnung unkritisch, da bei tiefen Temperaturen nur der Grundzustand angeregt ist, und andere Potentialformen keine großen Änderungen im Ergebnis der Rechnung hervorrufen [Phi81, Phi87]. Um eine bestimmte Potentialform festzulegen, müsste man Kenntnis über die mikroskopische Struktur des Festkörpers haben, diese Information fehlt jedoch bei amorphen Materialien.

Bild 3.1 zeigt eine schematische Darstellung des Potentials:

$$V(x) = \begin{cases} V_1(x) = \gamma(x+l)^2 + \Delta & \text{für alle } x \leq -\frac{\Delta}{4\gamma l} \\ V_2(x) = \gamma(x-l)^2 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (3.49)$$

Hierbei bezeichnet Δ die Asymmetrie des Doppelmuldenpotentials, m die effektive Masse des Teilchens, V_B die Barrierenhöhe zwischen den beiden Potentialmulden, γ die Kopp-

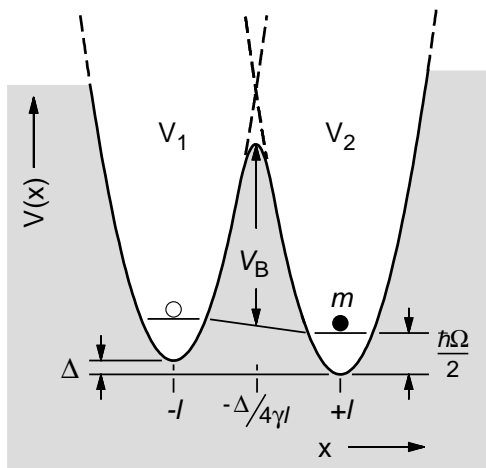


Bild 3.1: Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials $V(x)$, das aus zwei harmonischen Einzelpotentials $V_1(x)$ und $V_2(x)$ zusammengesetzt ist. Die Masse des tunnelnden Teilchens ist m , der Abstand der Potentialmulden im Konfigurationsraum $2l$. Weitere Parameter sind die Asymmetrieenergie Δ , die Barrierenhöhe V_B , die Kopplungskonstante γ und die Grundzustandsenergie im harmonischen Potential $1/2\hbar\Omega$.

lungskonstante und $2l$ den Abstand zwischen den Potentialminima im Konfigurationsraum. Die Koordinate x entspricht nicht unbedingt einer Translation, sondern bezeichnet als kollektive Koordinate die Umlagerung der Atomgruppe. Bei einem realen Festkörper sind die Parameter Δ , l , V_B und γ breit verteilt. Über Möglichkeiten, diese Verteilung mit Hilfe einer Verteilungsfunktion zu modellieren, wird in Abschnitt 3.2.1.2 diskutiert.

3.2.1.1 Der Hamiltonoperator im ungestörten Fall

Die Bestimmung der Energieniveaus erfordert die Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung:

$$H\varphi(x) = E\varphi(x), \quad H = -\frac{\hbar}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + V(x). \quad (3.50)$$

Die Lösung des Eigenwertproblems (3.50) für das Potential (3.49) läßt sich erleichtern, wenn zwei getrennte harmonische Potentiale $V_1(x)$ und $V_2(x)$ betrachtet werden (in Bild 3.1 gestrichelt weitergeführt). Für dieses einfache Problem ist die Lösung der Schrödingergleichung bekannt und führt auf die äquidistanten Energieeigenwerte:

$$E_1^{(n)} = \hbar\Omega (n + 1/2) + \Delta \quad \text{bzw.} \quad E_2^{(n)} = \hbar\Omega (n + 1/2), \quad (3.51)$$

mit $\Omega = \sqrt{2\gamma/m}$. Bei Annäherung der Potentiale beginnen sie sich zu stören und die Entartung des Grundzustandes wird aufgehoben. Als Lösungsansatz für das zusammengesetzte Potential $V(x)$ betrachtet man eine Linearkombination $\varphi = c_i\varphi_i$ aus den zu den Energieeigenwerten (3.51) gehörenden Eigenfunktionen. Dabei sind φ_i die nach Energien geordneten Eigenfunktionen der harmonischen Einzelpotentiale $V_1(x)$ und $V_2(x)$.

Für die Energiedifferenz ΔE zwischen Grundzustand und erstem angeregtem Zustand erhält man für typische Glasparameter⁷ einen Wert von rund $\Delta E/k_B = 50$ K. Bei Tieftemperaturexperimenten unterhalb einer Temperatur von 1 K kann deshalb der Beitrag der angeregten Eigenfunktionen bei der Lösung vernachlässigt werden.

Die Basis des Lösungsraums bilden dann die beiden Grundzustandseigenfunktionen der harmonischen Potentiale:

$$\varphi_1 = \left(\frac{\lambda}{\pi l^2}\right)^{1/4} e^{-\frac{\lambda}{2}\left(\frac{x}{l}+1\right)^2} \quad \text{und} \quad \varphi_2 = \left(\frac{\lambda}{\pi l^2}\right)^{1/4} e^{-\frac{\lambda}{2}\left(\frac{x}{l}-1\right)^2}, \quad (3.52)$$

mit dem Tunnelparameter:

$$\lambda := \frac{2\gamma l^2}{\hbar\Omega}, \quad (3.53)$$

der näherungsweise dem Verhältnis von Barrierenhöhe V_B zu Grundzustandsenergie $1/2\hbar\Omega$ entspricht. Um die Überlappung der beiden Wellenfunktionen noch als Störung behandeln zu können, muß dementsprechend dieses Verhältnis groß genug sein. Als akzeptabel hat sich $\lambda \geq 4$ erwiesen [Str97].

⁷ Verdrehung von SiO_4 -Tetraedern in Kieselglas: $m = 2.67 \cdot 10^{-25}$ kg, $\gamma = 5.0$ N m⁻¹, $l = 2 \cdot 10^{-11}$ m [Buc84]

Wenn man die Linearkombination $\varphi = c_i \varphi_i$ in die Schrödingergleichung (3.50) einsetzt, führt das auf die Eigenwertgleichungen:

$$c_i (H_{ji} - ED_{ji}) = 0 , \quad (3.54)$$

mit den Matrixelementen des Hamilton-Operators:

$$H_{ji} = \langle \varphi_j | H | \varphi_i \rangle , \quad (3.55)$$

und dem Überlapp der Wellenfunktionen:

$$D_{ji} = \langle \varphi_j | \varphi_i \rangle . \quad (3.56)$$

Mit den Basiseigenfunktionen (3.52) erhält man für den Überlapp:

$$D_{ii} = 1 \quad \text{und} \quad D_{12} = D_{21} = e^{-\lambda} . \quad (3.57)$$

Für die Hamiltonmatrix ergibt sich nach Ausführung der Integration:

$$\begin{aligned} H_{11} &= \frac{\hbar\Omega}{2} + \Delta , & H_{22} &= \frac{\hbar\Omega}{2} , \\ H_{12} = H_{21} &= \frac{\hbar\Omega}{2} e^{-\lambda} \left(1 - 2\sqrt{\frac{\lambda}{\pi}} \right) \frac{\Delta}{2} e^{-\lambda} . \end{aligned} \quad (3.58)$$

Um die Energiedarstellung zu erhalten, kann die Hamiltonmatrix durch eine Hauptachsentransformation diagonalisiert werden und man erhält die Energieeigenwerte:

$$E_{\pm} = \frac{\hbar\omega_0}{2} + \frac{\Delta}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta^2 + (\Delta_0(\lambda))^2} . \quad (3.59)$$

Der Grundzustand spaltet für endliche l auf, die Energiedifferenz zwischen den beiden niedrigsten Zuständen wird als *Energieaufspaltung* bezeichnet:

$$E := E_+ - E_- = \sqrt{\Delta^2 + (\Delta_0(\lambda))^2} . \quad (3.60)$$

Die Größe $\Delta_0(\lambda)$ nennt man *Tunnelaufspaltung*, da sie die Energieaufspaltung für symmetrische Systeme ($\Delta = 0$) angibt:

$$\Delta_0(\lambda) = -2\hbar\Omega \sqrt{\frac{\lambda}{\pi}} e^{-\lambda} . \quad (3.61)$$

Zu den Energieeigenwerten (3.59) erhält man folgende Eigenfunktionen:

$$\varphi_+ = \varphi_1 \cos \vartheta + \varphi_2 \sin \vartheta , \quad (3.62a)$$

$$\varphi_- = -\varphi_1 \sin \vartheta + \varphi_2 \cos \vartheta , \quad (3.62b)$$

mit $\tan 2\vartheta = \frac{\Delta_0}{\Delta}$. Zwischen diesen beiden Zuständen tunnelt das Teilchen mit einer Eigenfrequenz, die für symmetrische ($\Delta = 0$) Zweiniveausysteme gegeben ist durch:

$$f = \frac{|\Delta_0|}{h} . \quad (3.63)$$

Für typische Zweiniveausysteme in Kieselglas erhält man mit den in der Fußnote auf Seite 25 angegebenen Parametern eine Tunnelfrequenz von rund 7 GHz. Zum Vergleich sei die Tunnelfrequenz der Inversion des Ammoniakmoleküls angeführt: 150 GHz.

3.2.1.2 Die Verteilungsfunktion

Beim Abkühlen des Glases aus der Schmelze bildet sich eine Potentiallandschaft aus, bei der die Parameter der Doppelmuldenpotentiale V_B , m , l und Δ breit verteilt sind. Da man keine Kenntnis über die reale Verteilungsfunktion besitzt, wird eine konstante Verteilung der Parameter Δ und λ angenommen:

$$P_1(\Delta, \lambda)d\Delta d\lambda = \bar{P}d\Delta d\lambda . \quad (3.64)$$

Der materialabhängige Parameter \bar{P} muß experimentell bestimmt werden. Es sind jedoch nicht alle Zustände des Phasenraums (Δ, λ) belegt, sondern nur diejenigen, welche eine minimale Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}(\lambda)$ und maximale Energieaufspaltung E_{\max} haben.

Um die Zustandsdichte zu berechnen, wird auf eine Verteilungsfunktion von E und Δ_0 umgerechnet:

$$P_2(E, \Delta_0)dEd\Delta_0 = \bar{P} \frac{E}{\Delta_0} \frac{1}{\sqrt{E^2 - \Delta_0^2}} dEd\Delta_0 . \quad (3.65)$$

Bild 3.2 zeigt die Verteilung $P(E, \Delta_0)$ als Funktion von Δ_0/E . Man sieht, daß an beiden Rändern Singularitäten auftreten, wobei die Singularität bei $\Delta_0 = E$ integrierbar ist.

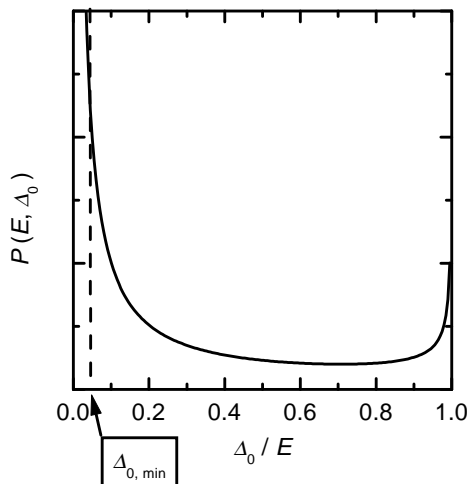


Bild 3.2: Verteilungsfunktion (3.65) als Funktion von Δ_0/E .

Die Zustandsdichte für das Tunnelmodell ist dann:

$$D(E) = \int_{\Delta_{0,\min}}^E P_2(E, \Delta_0) d\Delta_0 = \bar{P} \ln \left(\frac{2E}{\Delta_{0,\min}} \right). \quad (3.66)$$

Bis auf eine schwache (logarithmische) Abhängigkeit ist die Zustandsdichte unabhängig von der Energie.

3.2.2 Ankopplung von Tunnelzustandssystemen an elektrische Felder

Bei Messungen der dielektrischen Eigenschaften von Gläsern wird ein elektrisches Wechselfeld an die Probe angelegt. Tunnelzustände, die Ladung tragen, können an dieses Feld an koppeln (siehe Bild 3.3). Das angelegte elektrische Feld moduliert die Energieaufspaltung der Tunnelzustände und bringt diese aus der thermischen Gleichgewichtsbesetzung. Diese versuchen durch Relaxationsprozesse ihre Besetzung dem neuen Gleichgewichtswert anzupassen. Es wird nur eine Störung der Asymmetrieenergie Δ angenommen [Phi81]. Ein Einfluß des elektrischen Feldes auf die Tunnelaufspaltung Δ_0 wird üblicherweise vernachlässigt [Jäc72, Wür98], wenngleich es dafür noch keine befriedigende theoretische Erklärung gibt.

3.2.2.1 Die Meßgrößen

Die in dieser Arbeit bestimmten Meßgrößen sind die relative Änderung der Kapazität $\Delta C/C$ und der Verlustwinkel $\Delta \tan \delta = \epsilon''/\epsilon'$. Diese werden aus dem Real- bzw. Imaginärteil der dielektrischen Suszeptibilität berechnet:

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{\Delta \epsilon'}{\epsilon'} \simeq \frac{\text{Re } \delta \chi}{\epsilon_r} \quad (3.67a)$$

$$\Delta \tan \delta = \frac{\Delta \epsilon''}{\epsilon'} \simeq \frac{\text{Im } \delta \chi}{\epsilon_r} \quad (3.67b)$$

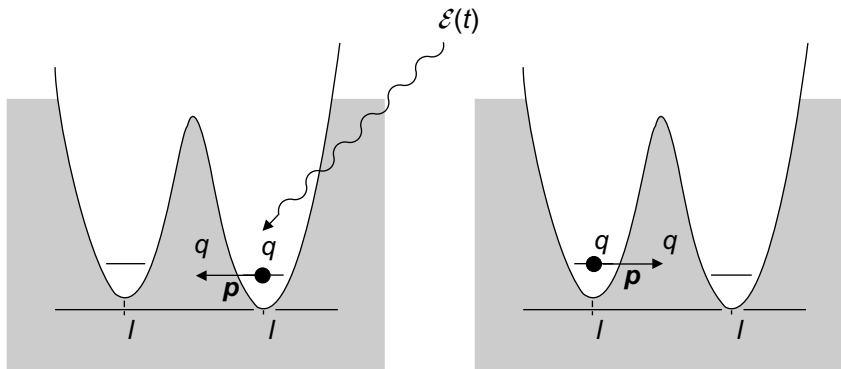


Bild 3.3: Skizze der Ankopplung eines Ladung tragenden Zweienergiezustands an ein äußeres elektrisches Feld $\mathcal{E}(t)$.

Die dielektrische Suszeptibilität ist über die Polarisierbarkeit bestimmt und diese erhält man aus dem mittleren Dipolmoment nach (3.5):

$$\delta P = \delta\chi(\omega)\mathcal{E}(\omega) \stackrel{!}{=} n_p \langle p(t) \rangle . \quad (3.68)$$

Zur Bestimmung des mittleren Dipolmoments muß die Störung durch das äußere elektrische Feld im Hamiltonoperator berücksichtigt werden. Dazu wird die zeitabhängige Schrödingergleichung in zeitabhängiger Störungsrechnung gelöst.

3.2.2.2 Zeitabhängige Störungsrechnung

Um die zeitabhängigen Wellenfunktionen zu finden, benutzt man einen Separationsansatz mit Zeitentwicklungsoperator:

$$\psi(x, t) = a_+(t)\varphi_+(x) e^{-itE_+/\hbar} + a_-(t)\varphi_-(x) e^{-itE_-/\hbar} . \quad (3.69)$$

Aus der Normierung von ψ und den zeitabhängigen Wellenfunktionen φ_{\pm} erhält man für die Amplitudenfunktionen⁸:

$$a_+^* a_+ + a_-^* a_- = 1 . \quad (3.70)$$

Der Operator für das mittlere zeitabhängige Dipolmoment ist:

$$\langle p_x(t) \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \psi^*(x, t) q x \psi(x, t) dx . \quad (3.71)$$

Das „ x “ im Index soll daran erinnern, daß das Problem bisher eindimensional angesetzt ist. Wenn man in den Operator (3.71) den Separationsansatz (3.69) einsetzt, führt dies auf:

$$\langle p_x(t) \rangle = p_x^0 \frac{\Delta}{E} (a_-^* a_- - a_+^* a_+) + p_x^0 \frac{\Delta}{E} (a_+^* a_- e^{itE/\hbar} + a_-^* a_+ e^{-itE/\hbar}) , \quad (3.72)$$

mit $p_x^0 := ql$, wenn q die tunnelnde Ladung und $2l$ der Abstand zwischen den Potentialmulden ist (siehe Bild 3.1). Zur Bestimmung der Amplitudenfunktionen a_{\pm} wird die Wellenfunktion (3.69) in die zeitabhängige Schrödingergleichung eingesetzt:

$$(H_0 + H_{\text{int}}) = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} \quad \text{mit} \quad H_{\text{int}} = -qx\mathcal{E}(t) . \quad (3.73)$$

Hier bezeichnet H_{int} den durch das elektrische Feld erzeugten Stör-Hamiltonoperator. Man erhält eine gekoppelte Differentialgleichung für die Amplitudenfunktionen a_{\pm} , die man entkoppeln kann:

$$\dot{a}_+ = \frac{1}{i\hbar} (\langle \varphi_+ | H_{\text{int}} | \varphi_+ \rangle a_+ + \langle \varphi_+ | H_{\text{int}} | \varphi_- \rangle a_- e^{itE/\hbar}) , \quad (3.74a)$$

$$\dot{a}_- = \frac{1}{i\hbar} (\langle \varphi_- | H_{\text{int}} | \varphi_- \rangle a_- + \langle \varphi_+ | H_{\text{int}} | \varphi_- \rangle a_- e^{itE/\hbar}) . \quad (3.74b)$$

⁸Im Folgenden bezeichnet ein Stern „*“ die komplex konjugierte Größe

Wenn man den Stör-Hamiltonoperator $H_{\text{int}} = -qx\mathcal{E}(t)$ einsetzt, dann haben die Differentialgleichungen für die Amplitudenfunktionen (3.74) folgende Form:

$$\dot{a}_+ = i\frac{\mathcal{E}(t)}{\hbar} (-p_x^- a_+ + p_x^-+ a_- e^{itE/\hbar}) , \quad (3.75a)$$

$$\dot{a}_- = i\frac{\mathcal{E}(t)}{\hbar} (p_x^- a_- + p_x^-+ a_+ e^{-itE/\hbar}) , \quad (3.75b)$$

mit den Vorfaktoren

$$p_x^- = \langle \varphi_- | qx | \varphi_- \rangle = - \langle \varphi_+ | qx | \varphi_+ \rangle = p_x^0 \frac{\Delta}{E} , \quad (3.76a)$$

$$p_x^-+ = \langle \varphi_- | qx | \varphi_+ \rangle = \langle \varphi_+ | qx | \varphi_- \rangle = p_x^0 \frac{\Delta_0}{E} . \quad (3.76b)$$

Um das mittlere Dipolmoment (3.72) zu bestimmen, müssen nun noch die gekoppelten Differentialgleichungen für die Amplitudenfunktionen (3.75) gelöst werden. Die Rechnung kann vereinfacht werden, wenn die formale Analogie zu Spin-1/2-Teilchen im Magnetfeld ausgenutzt wird.

3.2.2.3 Blochgleichungen

Bei der Beschreibung der Dynamik von Zweiniveausystemen in Analogie zu Spin-1/2-Teilchen im Magnetfeld kann auf eine Fülle von theoretischen Beschreibungen (siehe z. B. [Abr61]) zurückgegriffen werden. Der Hamiltonoperator H_0 im ungestörten Fall (3.58) wird dazu neu formuliert:

$$H_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} = \frac{1}{2} (\Delta S^z - \Delta_0 S^x) , \quad (3.77)$$

mit den Pauli-Spinmatrizen (die üblicherweise ohne Faktor 1/2 definiert werden). Diese werden im folgenden als *Pseudo-Spinoperatoren* bezeichnet:

$$S^x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} , \quad (3.78a)$$

$$S^y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} , \quad (3.78b)$$

$$S^z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} . \quad (3.78c)$$

Der Operator für das mittlere Dipolmoment (3.72) wird umformuliert:

$$\langle p_x(t) \rangle = 2p_x^- \langle S^z \rangle + 2p_x^-+ \langle S^x \rangle , \quad (3.79)$$

mit den Erwartungswerten der Pseudo-Spinoperatoren:

$$\langle S^x \rangle = \frac{1}{2} (A_-^* A_+ + A_+^* A_-) , \quad (3.80a)$$

$$\langle S^y \rangle = -\frac{1}{2} i (A_-^* A_+ - A_+^* A_-) , \quad (3.80b)$$

$$\langle S^z \rangle = \frac{1}{2} (A_-^* A_- - A_+^* A_+) , \quad (3.80c)$$

und der Abkürzung $A_{\pm} = a_{\pm} e^{-itE_{\pm}/\hbar}$.

Die Dynamik der Zweiniveausysteme ist durch die zeitliche Änderung der Erwartungswerte (3.80) gegeben. Um neben der kohärenten Wechselwirkung mit dem äußeren Feld auch die inkohärente Wechselwirkung mit Phononen zu berücksichtigen, werden phänomenologische Relaxationsterme mit den Relaxationszeiten τ_1 und τ_2 eingeführt. In der Zeit τ_1 , gegeben durch (3.90), relaxiert die Besetzungszahldifferenz der Zweiniveausysteme $\langle S^z \rangle$ zurück in ihren thermischen Gleichgewichtswert $\langle S^z \rangle^{\text{eq}}(\mathcal{E})$. Die Relaxationszeit τ_2 gibt an, wie lange es dauert, bis die quantenmechanischen Phasen φ_+ und φ_- ihre Kohärenz verlieren. Diese Gleichungen wurden von Bloch schon 1946 für die magnetische Resonanz abgeleitet [Blo46] und als *Blochgleichungen* bezeichnet. Für Zweiniveausysteme mit der Energieaufspaltung $E = \hbar\omega_r$ erhält man folgende Blochgleichungen:

$$\langle \dot{S}^x \rangle = -\frac{1}{\tau_2} \langle S^x \rangle - \left(\omega_r + \frac{2p_x^- \mathcal{E}}{\hbar} \right) \langle S^y \rangle , \quad (3.81a)$$

$$\langle \dot{S}^y \rangle = -\frac{1}{\tau_2} \langle S^y \rangle + \left(\omega_r + \frac{2p_x^- \mathcal{E}}{\hbar} \right) \langle S^x \rangle + \frac{2p_x^- \mathcal{E}}{\hbar} \langle S^z \rangle , \quad (3.81b)$$

$$\langle \dot{S}^z \rangle = \frac{2p_x^- \mathcal{E}}{\hbar} \langle S^y \rangle - \frac{1}{\tau_1} \left(\langle S^z \rangle - \langle S^z \rangle^{\text{eq}}(\mathcal{E}) \right) . \quad (3.81c)$$

3.2.2.4 Lösungen der Bloch-Gleichungen im linearen Fall

Die Lösung der Bloch-Gleichungen für eine harmonische Störung ($\mathcal{E}(t) = \mathcal{E} e^{i\omega t}$) wird nun für den stationären Fall berechnet, d. h. wenn die durch die Relaxationsterme erzeugten Anteile abgeklungen sind. Diese Näherung ist gerechtfertigt, da typische Relaxationsraten im Bereich von $\tau^{-1} \approx 10^7 \text{ s}^{-1}$ liegen [Phi87], während die Meßfrequenz $\omega/2\pi = 1 \text{ kHz}$ beträgt. Außerdem soll die Störung durch das äußere Feld klein sein ($p_x^0 \mathcal{E} \ll E$), damit das Problem in linearer Näherung betrachtet werden kann. Die Besetzungszahldifferenz im thermischen Gleichgewicht ohne äußeres Störfeld $\langle S^z \rangle_0^{\text{eq}}$ ist gegeben durch:

$$\langle S^z \rangle_0^{\text{eq}} = -\frac{1}{2} \tanh \left(\frac{E}{2k_B T} \right) . \quad (3.82)$$

Im linearen Fall kann die Besetzungszahldifferenz mit Störfeld durch eine Entwicklung angenähert werden:

$$\begin{aligned} \langle S^z \rangle^{\text{eq}}(\mathcal{E}) &= \langle S^z \rangle_0^{\text{eq}} + \left. \frac{\partial \langle S^z \rangle^{\text{eq}}}{\partial (E + 2p_x^- \mathcal{E})} \right|_{\mathcal{E}=0} 2p_x^- \mathcal{E} \\ &= -\frac{1}{2} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) - \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{p_x^- \mathcal{E}}{2k_B T}. \end{aligned} \quad (3.83)$$

Nach Lösung der Blochgleichungen können die Erwartungswerte der Pseudospinoperatoren $\langle S^x \rangle$ und $\delta \langle S^z \rangle = \langle S^z \rangle - \langle S^z \rangle_0^{\text{eq}}$ berechnet werden, die man zur Bestimmung des mittleren Dipolmoments (3.72) benötigt:

$$\langle S^x \rangle = \frac{p_x^{-+}}{\hbar} \langle S^z \rangle_0^{\text{eq}} \mathcal{E}(t) \frac{2\omega_r}{(\omega + i\tau_2^{-1})^2 - \omega_r^2}, \quad (3.84a)$$

$$\delta \langle S^z \rangle = 2p_x^- \mathcal{E}(t) \left. \frac{\partial \langle S^z \rangle^{\text{eq}}}{\partial (E + 2p_x^- \mathcal{E})} \right|_{\mathcal{E}=0} \frac{1}{1 - i\omega\tau_1}. \quad (3.84b)$$

Zur Berechnung der Suszeptibilität werden die Erwartungswerte für die Pseudospinoperatoren (3.84) in die Formel für die Polarisierbarkeit eingesetzt. Nach Aufspaltung in Real- und Imaginärteil ($\delta\chi = \delta\chi' - i\delta\chi''$) können die jeweiligen Lösungen noch in einen resonanten und einen relaxierenden Beitrag getrennt werden. Zusätzlich kommt noch ein Faktor $\cos\vartheta$ hinzu, der aus den Orientierungen der Dipolmomente zum äußeren Feld resultiert.

Relaxationsbeitrag:

$$\delta\chi'_{\text{rel}} = \frac{p_0^2 \cos^2 \vartheta}{k_B T} \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2 \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_1^2} \quad (3.85a)$$

$$\delta\chi''_{\text{rel}} = \frac{p_0^2 \cos^2 \vartheta}{k_B T} \left(\frac{\Delta}{E}\right)^2 \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{\omega\tau_1}{1 + \omega^2 \tau_1^2} \quad (3.85b)$$

Resonanter Beitrag:

$$\delta\chi'_{\text{res}} = \frac{p_0^2 \cos^2 \vartheta}{\hbar} \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \left(\frac{(\omega - \omega_r)\tau_2^2}{1 + \tau_2^2(\omega - \omega_r)^2} - \frac{(\omega + \omega_r)\tau_2^2}{1 + \tau_2^2(\omega + \omega_r)^2} \right) \quad (3.85c)$$

$$\delta\chi''_{\text{res}} = \frac{p_0^2 \cos^2 \vartheta}{\hbar} \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \left(\frac{\tau_2}{1 + \tau_2^2(\omega - \omega_r)^2} - \frac{\tau_2}{1 + \tau_2^2(\omega + \omega_r)^2} \right) \quad (3.85d)$$

Relaxationsanteil Gleichungen (3.85a) und (3.85b) geben die Relaxation eines Zweiniveausystems im elektrischen Feld wieder. Das Frequenzverhalten gleicht dem eines Dipols im elektrischen Feld und wird durch die in Abschnitt 3.1.4 abgeleitete Debye-Gleichung (3.39) bestimmt. Bild 3.4 zeigt Real- und Imaginärteil der Debye-Funktion in Abhängigkeit von $\omega\tau_1$.

Durch den Relaxationsprozeß wird dem äußeren Feld Energie entzogen, man spricht von *Relaxationsabsorption*. Die Verluste werden durch den Imaginärteil der Debyefunktion beschrieben (in Bild 3.4 gestrichelt eingezeichnet).

Man sieht, daß der Verlust bei $\omega = \tau_1^{-1}$ maximal wird. Bei kleineren Frequenzen ($\omega \ll \tau_1^{-1}$) können die Tunnelzustandssysteme der Modulation durch das äußere Feld sofort folgen, deshalb wird dem äußeren Feld kaum Energie entzogen. Bei größeren Frequenzen ($\omega \gg \tau_1^{-1}$) können die Tunnelzustandssysteme der Störung nicht mehr folgen, dadurch wird der Relaxationsbeitrag klein.

Resonanter Anteil Gleichungen (3.85c) und (3.85d) beschreiben die resonante Wechselwirkung zwischen Tunnelzustandssystemen und dem elektrischen Störfeld. Im Gegensatz zum Relaxationsanteil, der aufgrund des Vorfaktors $(\Delta/E)^2$ bei asymmetrischen Zweiniveausystemen maximal wird, ist der resonante Beitrag bei symmetrischen Zweiniveausystemen am größten. Die Frequenzabhängigkeit, gegeben durch den rechten Term in den Gleichungen, ist in Bild 3.5 skizziert.

Man sieht das typische Dispersions- bzw. Absorptionsverhalten eines harmonischen Oszillators mit der Eigenfrequenz ω_r . Für große Frequenzen ($\omega \gg \omega_r$) gehen sowohl

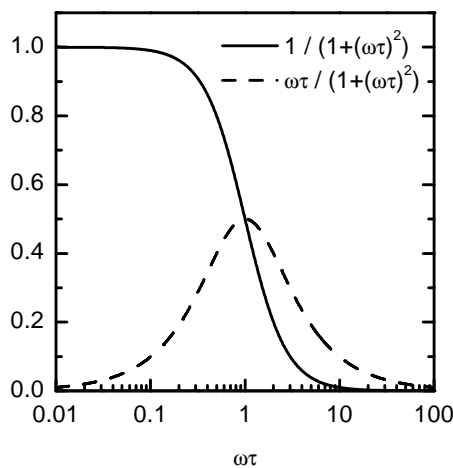


Bild 3.4: Frequenzabhängigkeit des Realteils (durchgezogene Linie) und des Imaginärteils (gestrichelte Linie) der Debye-Funktion nach Formel (3.39). Dies bestimmt die Frequenzabhängigkeit des Relaxationsbeitrags, siehe Gleichungen (3.85a,b).

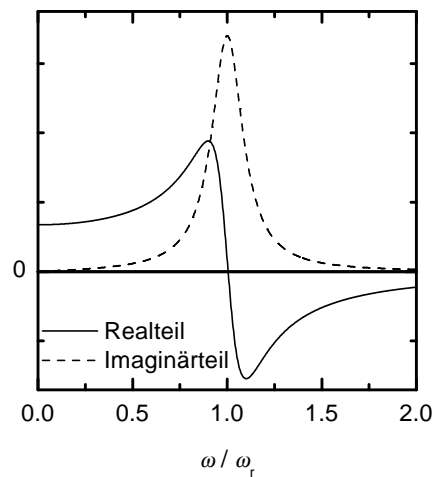


Bild 3.5: Frequenzabhängigkeit des Real- und Imaginärteils des resonanten Beitrags (3.85c,d) zur Suszeptibilität eines Tunnelzustandssystems.

Real- als auch Imaginärteil gegen Null. Im niederfrequenten Bereich ($\omega \ll \omega_r$) ist der Imaginärteil Null, während sich der Realteil einem konstanten Wert annähert. In der Umgebung der Resonanzfrequenz ($\omega = \omega_r$) ergeben sich die stärksten Änderungen der Suszeptibilität. Die Absorption hat ein Maximum und die Dispersion wechselt ihr Vorzeichen.

3.2.3 Ankopplung von Tunnelzustandssystemen an Phononen

Um den Relaxationsanteil der dielektrischen Suszeptibilität zu berechnen, benötigt man Ausdrücke für die phänomenologischen Relaxationszeiten der Wechselwirkung mit Phononen. Die Ankopplung von Tunnelzustandssystemen an Phononen kann in Analogie zum Vorgehen bei der Ankopplung an elektrische Felder beschrieben werden. Statt des elektrischen Feldes wirkt ein Verzerrungsfeld, das die Asymmetrieenergie Δ der Zweiniveausysteme moduliert. Wie bei der Beschreibung der Kopplung an elektrische Felder wird ein Einfluß der Verzerrung auf die Tunnelaufspaltung Δ_0 üblicherweise vernachlässigt [Jäc72,Wür98], wengleich es dafür noch keine befriedigende theoretische Erklärung gibt. Terme höherer Ordnung der Verzerrung können vernachlässigt werden [Leg87], so daß ein linearer Ansatz für die Kopplung des Verzerrungsfelds an die Zweiniveausysteme ausreicht.

Zur Vereinfachung der Beschreibung wird der tensorielle Charakter des Verzerrungsfeldes vernachlässigt, indem ein mittleres Feld e angenommen wird und die verschiedenen Polarisationsrichtungen α der Phononenzweige durch einen unterschiedliche Kopplungsfaktor γ_α beschrieben werden [Jäc72]. Somit nimmt der elastische Stör-Hamiltonoperator in der Energiedarstellung folgende Gestalt an:

$$H_{\text{int,ela.}} = \frac{1}{E} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \gamma_\alpha e . \quad (3.86)$$

Wenn die Energie der Phononen vergleichbar mit der Energieaufspaltung der Tunnelzustandssysteme wird, kann das Zweiniveausystem durch Absorption angeregt werden. Ebenso kann das System unter Emission eines Phonons in den unteren Zustand übergehen. Dieser Prozeß wird auch *Einphononenprozeß* genannt.

Die Übergangswahrscheinlichkeiten für diesen Prozeß können in Störungsrechnung nach der Goldenen Regel (siehe z. B. [Sch93]) berechnet werden:

$$W_{12} = \sum_{\alpha} |\langle \varphi_+ | H_{\text{int,ela.}} | \varphi_- \rangle|^2 D(E) f(E) , \quad (3.87)$$

mit der Bose-Einstein-Verteilung der Phononen $f(E) = (e^{E/k_B T} - 1)^{-1}$ und der Zustandsdichte der Phononen in der Debye-Näherung:

$$D(E) = \frac{E^2}{2\pi^2 \hbar^3 v_\alpha^3} . \quad (3.88)$$

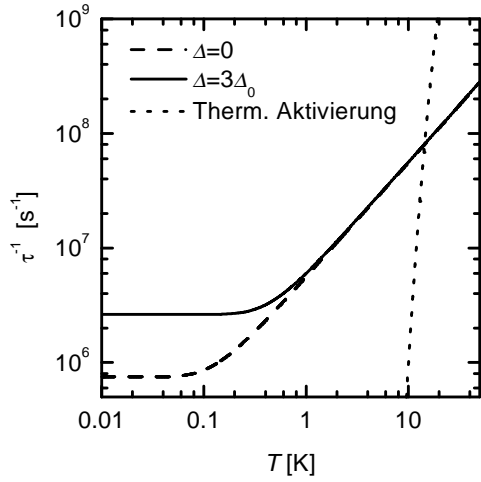


Bild 3.6: Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate für ein Tunnelzustandssystem durch den Einphononenprozeß nach (3.91) für zwei verschiedene Asymmetrieenergien Δ und durch thermische Aktivierung (3.92). Beispielhaft wurden folgende Parameter für die Verdrehung von SiO_4 -Tetraedern eingesetzt: $m = 2.67 \cdot 10^{-25}$ kg, $\gamma = 5.0 \text{ N m}^{-1}$, $l = 2 \cdot 10^{-11}$ m, $V_B/k_B = 145$ K und $\Delta_0/k_B = 0.267$ K. [Str97]

Das Übergangsmatrixelement ergibt [Jäc72]:

$$|\langle \varphi_+ | H_{\text{int,ela.}} | \varphi_- \rangle| = \gamma_\alpha \frac{\Delta_0}{E} \sqrt{\frac{\hbar}{2\rho\omega}} |\mathbf{q}_\alpha|, \quad (3.89)$$

mit dem Wellenvektor \mathbf{q}_α der Phononen. Die Relaxationsrate für den Einphononenprozeß kann aus den Übergangsraten für Absorption und Emission berechnet werden:

$$\tau_1^{-1} = W_{12} + W_{21} = W_{12} \left(1 + e^{\frac{E}{k_B T}} \right). \quad (3.90)$$

Gleichungen (3.87), (3.88) und (3.89) in (3.90) eingesetzt, ergibt die Relaxationsrate für den Einphononenprozeß (Im folgenden ohne Index als τ^{-1} bezeichnet):

$$\tau^{-1} = \left(\frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) \frac{\Delta_0^2 E}{2\pi \hbar^4} \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (3.91)$$

Die Indizes „l“ und „t“ bezeichnen den longitudinalen bzw. transversalen Phononenzweig. Bei höheren Temperaturen kann die Barriere unter Mitwirkung vieler Phononen thermisch übersprungen werden. Dieser Prozeß der thermischen Aktivierung kann klassisch durch einen Arrhenius-Ansatz beschrieben werden [Rau95]:

$$\tau_{\text{therm.}}^{-1} = \frac{1}{\pi} \sqrt{\frac{2\gamma}{m}} e^{-\frac{V_B}{k_B T}} \cosh \frac{\Delta}{2k_B T}. \quad (3.92)$$

In der vergleichenden Darstellung von Einphononenprozeß und thermischer Aktivierung, Bild 3.6, ist erkennbar, daß der thermische Prozeß erst ab Temperaturen von rund 10 K von Bedeutung ist.

3.2.3.1 Verteilungsfunktion $P_3(E, \tau)$

Die Berechnung des Relaxationsanteils wird vereinfacht, wenn statt der Verteilungsfunktion $P_2(E, \Delta_0)$, Gleichung (3.65), eine Verteilungsfunktion verwendet wird, welche die

Verteilung der Relaxationszeiten τ berücksichtigt. Mit Hilfe einer Jakobi-Transformation erhält man:

$$P_3(E, \tau) = \frac{\bar{P}}{2\tau \sqrt{1 - \frac{\tau_{\min}(E)}{\tau}}} . \quad (3.93)$$

Die kürzeste Relaxationszeit τ_{\min} ergibt sich für symmetrische Tunnelsysteme ($\Delta = 0$), bei denen die Tunnelaufspaltung Δ_0 gleich der Energieaufspaltung E ist. Systeme mit der kleinsten Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$ haben die längste Relaxationszeit τ_{\max} :

$$\tau_{\min}(E) = \frac{K}{E^3} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) , \quad (3.94a)$$

$$\tau_{\max}(E) = \frac{K}{\Delta_{0,\min}^2 E} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad \text{mit} \quad K = 2\pi \rho \hbar^4 \left(\frac{\gamma_1^2}{v_1^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5}\right)^{-1} . \quad (3.94b)$$

3.2.4 Integration über die Verteilungsfunktion

Die Funktionen (3.85) geben die Antworten *eines* Zweiniveausystems mit definierter Tunnelaufspaltung Δ_0 und Energieaufspaltung E wieder. Um die Meßgrößen (3.67) im realen amorphen Festkörper zu erhalten, muß die dielektrische Suszeptibilität (3.85) über die Verteilungsfunktion $P_2(E, \Delta_0)$ und die Orientierung im Raum (ϑ, φ) integriert werden. Die Integration über letztere⁹ liefert einen Faktor $4/3\pi$, wohingegen die Integration über die zwei Parameter der Verteilungsfunktion analytisch nicht lösbare Doppelintegrale liefert.

Typische Energieaufspaltungen von Tunnelzustandssystemen bei Tieftemperaturexperimenten entsprechen Frequenzen im Bereich von $\omega_r/2\pi = 10^8$ Hz. Da bei den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten eine Meßbrücke mit einer festen Meßfrequenz von 1 kHz verwendet wurde (siehe Abschnitt 4.5), ist eine niederfrequente Näherung $\omega \ll \omega_r$ sicherlich gerechtfertigt.

3.2.4.1 Resonanter niederfrequenter Beitrag

In der Näherung ($\omega \ll \omega_r$) ist der Imaginärteil des resonanten Beitrages Null und im Realteil kann eine der beiden Integrationen über die Verteilungsfunktion ausgeführt werden:

$$\frac{\Delta C}{C} \Big|_{\text{res}} = \frac{\bar{P} p_0^2}{3\epsilon_0 \epsilon_r} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} \frac{dE}{E} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta_{0,\min}}{E}\right)^2} , \quad (3.95a)$$

$$\Delta \tan \delta \Big|_{\text{res}} = 0 . \quad (3.95b)$$

⁹Berechnung: $\int_0^\pi \cos^2 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta \int_0^{2\pi} d\varphi = \frac{4\pi}{3}$.

Wenn man als weitere Näherung die Integrationsgrenzen erweitert ($E_{\max} \rightarrow \infty$ und $\Delta_{0,\min} \rightarrow 0$), dann bestimmt der Term dE/E das Integral und man erhält eine logarithmische Variation des Realteils mit der Energie und damit auch der Temperatur:

$$\left. \frac{\Delta C}{C} \right|_{\text{res}} \approx -\frac{2\bar{P}p_0^2}{3\epsilon_0\epsilon_r} \left(\frac{T}{T_0} \right). \quad (3.96)$$

3.2.4.2 Niederfrequenter Relaxationsbeitrag

Bei der Integration über die Verteilungsfunktion der Tunnelzustandssysteme wird im Relaxationsbeitrag die Verteilungsfunktion der Relaxationszeiten $P_3(E, \tau)$, (3.93), angewendet:

$$\left. \frac{\Delta C}{C} \right|_{\text{rel}} = \frac{\bar{P}p_0^2}{6\epsilon_0\epsilon_r k_B T} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} dE \int_{\tau_{\min}(E)}^{\tau_{\max}(E)} \frac{d\tau}{\tau} \sqrt{1 - \frac{\tau_{\min}(E)}{\tau}} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{2k_B T} \right) \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2}, \quad (3.97a)$$

$$\Delta \tan \delta \Big|_{\text{rel}} = \frac{\bar{P}p_0^2}{6\epsilon_0\epsilon_r k_B T} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} dE \int_{\tau_{\min}(E)}^{\tau_{\max}(E)} \frac{d\tau}{\tau} \sqrt{1 - \frac{\tau_{\min}(E)}{\tau}} \operatorname{sech}^2 \left(\frac{E}{2k_B T} \right) \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}. \quad (3.97b)$$

Diese Integrale sind analytisch nicht lösbar. Eine Möglichkeit ist es, numerische Methoden einzusetzen, andererseits kann man sich für verschiedene Bedingungen Näherungslösungen berechnen.

Für $\omega \tau_{\min} \gg 1$, d. h. im Tieftemperaturbereich, ist der Beitrag der Relaxation zum Realteil im Vergleich zum resonanten Beitrag vernachlässigbar. Unter der Bedingung $\omega \tau_{\min} \ll 1$ hingegen ist der Term $d\tau/\tau$ dominierend und man erhält wiederum eine logarithmische Variation mit der Temperatur:

$$\left. \frac{\Delta C}{C} \right|_{\text{rel}} \approx \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_r \epsilon_0} \left(\frac{T}{T_0} \right). \quad (3.98)$$

In Bild 3.7 sind Rechnungen nach dem Tunnelmodell für BK7 graphisch dargestellt. Dabei wurde neben den Parametern aus Tabelle 4.9 die Näherungen $\Delta_{0,\min} \rightarrow 0$ bzw. $E_{\max} \rightarrow \infty$ durch die Werte $\Delta_{0,\min}/k_B = 10^{-8}$ K bzw. $E_{\max}/k_B = 100$ K realisiert. Betrachtet man von tiefen Temperaturen kommend die relative Änderung der Kapazität, d. h. die Summe aus resonantem (3.95a) und relaxierendem Anteil (3.97a), dann fällt dieser nach (3.96) zuerst logarithmisch ab. Sobald der Relaxationsanteil an Einfluß gewinnt, durchläuft die Suszeptibilität ein Minimum, um danach wieder logarithmisch anzusteigen. In halblogarithmischer Auftragung verhalten sich die Steigungen der Suszeptibilität links und rechts vom Minimum wie $-2:1$.

Die Lage des Minimums ist von der Meßfrequenz abhängig:

$$T_{\min} = \sqrt[3]{\frac{K}{4k_B^3} \omega}, \quad (3.99)$$

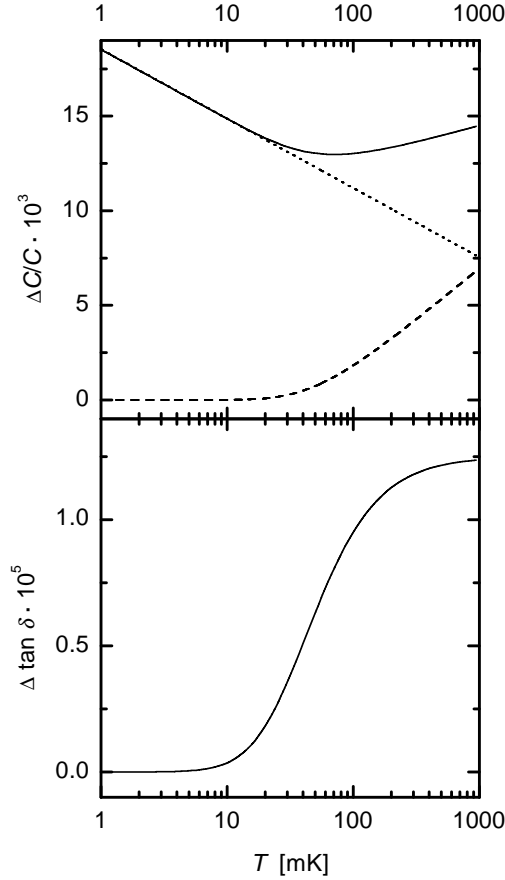


Bild 3.7: Berechnung der relativen Änderung der Kapazität (durchgezogene Linie, oben), zusammengesetzt aus dem resonanten Beitrag (punktierte Linie) nach Gleichung (3.95a) und dem Relaxationsbeitrag (gestrichelte Linie) nach Gleichung (3.97a). Im unteren Bild ist die Änderung des Verlustwinkels nach Gleichung (3.97b) aufgetragen. Die Rechnungen wurden für BK7 mit den Parametern aus Tabelle 4.9, sowie $\Delta_{0,\min}/k_B = 10^{-8}$ K und $E_{\max}/k_B = 100$ K durchgeführt.

mit der Konstanten K aus Gleichung (3.94). In der Näherung $\omega\tau_{\min} \gg 1$ erhält man für den Verlustwinkel:

$$\Delta \tan \delta = \frac{\pi^4 \bar{P} p_0^2 k_B^3}{36 K \omega \epsilon_0 \epsilon_r} T^3, \quad (3.100)$$

d. h. die Verluste steigen mit T^3 an. Bei höheren Temperaturen, $\omega\tau_{\min} \ll 1$, wird der Verlustwinkel konstant und unabhängig von der Frequenz:

$$\Delta \tan \delta = \frac{\pi \bar{P} p_0^2}{6 \epsilon_0 \epsilon_r}. \quad (3.101)$$

Dies erlaubt eine Bestimmung des Produkts $\bar{P} p_0^2$, der in dieser Arbeit für BK7 erhaltene Wert ist in Tabelle 4.9, Seite 68 aufgeführt.

3.2.4.3 Akustische Messungen

Weitere Informationen über die Anwendbarkeit des Tunnelmodells liefern akustische Messungen. Wie in Abschnitt 3.2.3 dargestellt, erfolgt die Beschreibung der Ankopplung von Zweiniveausystemen an elastische Felder analog zur Beschreibung der Ankopplung

an elektrische Felder. Statt der dielektrischen Suszeptibilität betrachtet man eine akustische Suszeptibilität χ_{ak} . Die Meßgrößen im akustischen Fall sind relative Schallgeschwindigkeitsänderung und innere Reibung:

$$\frac{\Delta v}{v} = -\frac{1}{2}\rho v^3 \chi'_{\text{ak}}, \quad (3.102a)$$

$$Q^{-1} = \rho v^2 \chi''_{\text{ak}}. \quad (3.102b)$$

Aus den Lösungen der Blochgleichungen für den akustischen Fall resultieren – für kleine Schallintensitäten – die gleichen funktionellen Abhängigkeiten wie im dielektrischen Fall. In Gleichungen (3.95) bzw. (3.97) muß lediglich der Vorfaktor $2\bar{P}p_0^2/3\epsilon_0\epsilon_r$ durch $\bar{P}\gamma^2/\rho v^2$ ersetzt werden. Die relative Schallgeschwindigkeitsänderung hat das entgegengesetzte Vorzeichen wie die relative Kapazitätsänderung. Daraus folgt, daß die im vorigen Abschnitt 3.2.4 getroffenen Vorhersagen des Tunnelmodells auch im akustischen Fall – leicht modifiziert – zutreffen. Die relative Schallgeschwindigkeitsänderung sollte ein Steigungsverhältnis links und rechts des Minimums wie 2:–1 aufweisen und der Verlustwinkel bei ultratiefen Temperaturen mit T^3 variieren, bei höheren Temperaturen anschließend in ein Plateau münden.

3.2.5 Relaxation nach Anlegen eines hohen elektrischen Gleichfeldes

Die bisherige Beschreibung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern wurde unter der Annahme durchgeführt, daß sich die Probe im thermischen Gleichgewicht befindet. Bei plötzlichem Anlegen eines großen elektrischen Gleichfeldes \mathcal{E}_{DC} an die Probe bei $t = 0$ werden die Zweiniveausysteme aus ihrer thermischen Gleichbesetzung $\langle S^z \rangle^{\text{eq}}(\mathcal{E})$ gebracht. Mit der Relaxationszeit τ_1 relaxiert der Erwartungswert wieder zurück in den Gleichgewichtswert. Da die Störung durch das Gleichfeld groß sein soll (z. B. $\mathcal{E}_{\text{DC}} = 2 \cdot 10^5 \text{ V/m}$) im Vergleich zum Meßfeld (typ. $\mathcal{E} = 2000 \text{ V/m}$) kann nicht mehr für den stationären Fall gerechnet werden.

Zu diesem Problem gibt es einige Arbeiten [Car94, Bur95, Bur98], die nachfolgende Beschreibung ist an die Veröffentlichung von Carruzzo, Grannan und Yu (1994) angelehnt. Das angelegte elektrische Gleichfeld \mathcal{E}_{DC} verschiebt die Asymmetrieenergie Δ der Zweiniveausysteme. Doch im Gegensatz zum Meßfeld der Anregungsspannung $\mathcal{E}(t)$ kann die Beeinflussung durch das Gleichfeld nicht mehr als Störung beschrieben werden. Stattdessen ersetzt man die bisherige Asymmetrieenergie Δ durch $\tilde{\Delta} = \Delta + 2\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_{\text{DC}}$. Dadurch wird auch eine neue Energieaufspaltung $\tilde{E} = (\tilde{\Delta}^2 + \Delta_0^2)^{1/2}$ erhalten.

Bei der Beschreibung der Dynamik muß darauf geachtet werden, daß aufgrund der Größe der Relaxationsbeiträge durch das elektrische Gleichfeld, nicht mehr auf das Abklingen der Relaxationsterme gewartet werden kann. Dadurch enthält die Störungsrechnung einen zeitabhängigen Anteil, der auch in der resultierenden Suszeptibilität vorhanden ist.

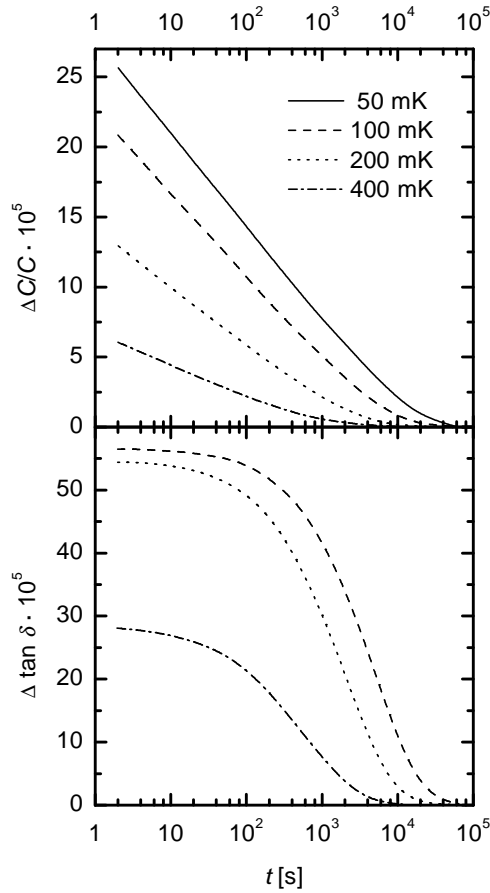


Bild 3.8: Berechnung der relativen Änderung von Kapazität und Verlustwinkel für $T = 50$ mK (durchgezogen), 100 mK (gestrichelt), 200 mK (punktiert) und 400 mK (strichpunktiert) nach Anlegen eines elektrischen Gleichfeldes $\mathcal{E}_{\text{DC}} = 2 \cdot 10^6$ V/m. Für den Verlustwinkel wurden bei $T = 50$ mK keine Werte berechnet. Die Rechnung basiert auf folgenden Parametern für SiO_2 : $\overline{P}p_0^2 = 1.67 \cdot 10^{15}$ C/J m², $\rho = 2200$ kg/m³, $\gamma = 1$ eV, $v_l = 5800$ m/s, $v_t = 3800$ m/s, $\Delta_{0,\text{min}}/k_B = 2 \cdot 10^{-6}$ K, $E_{\text{max}}/k_B = 4$ K und $\Delta_{\text{max}}/k_B = 4$ K. Nach [Car94].

In der Arbeit [Car94] wurde die Suszeptibilität numerisch ausgewertet. Bild 3.8 zeigt das Zeitverhalten der relativen Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels nach Anlegen eines konstanten elektrischen Feldes mit den in der Bildunterschrift angegebenen Parametern. Man sieht bei der Kapazität eine logarithmische Relaxation mit der Zeit. Der Verlustwinkel hingegen ist zuerst flach und fällt dann bei längeren Zeiträumen ab.

3.3 Quanteneffekte des magnetischen Flusses

Das im vorigen Abschnitt 3.2 dargestellte Standardtunnelmodell beschreibt die niederenergetischen Anregungen in Gläsern bei tiefen Temperaturen durch das Tunneln eines Teilchens (Atom oder Atomgruppe) in einem eindimensionalen Doppelmuldenpotential. In realen Festkörpern hingegen kann es energetisch günstiger sein, wenn das Teilchen nicht den direkten Weg zurücklegt, bei dem die zwischenmolekularen Bindungen gestaucht werden, sondern eine dreidimensionale Bewegung in die neue Lage vollzieht. Ein Modell zur Beschreibung solcher Bewegung wurde zur Erklärung des experimentell gefundenen oszillatorischen Verhaltens der dielektrischen Permittivität [Str00] von Kettemann, Fulde und Strehlow [Ket99] vorgestellt.

3.3.1 Modell von Kettemann, Fulde und Strehlow

Als Ausgangspunkt zur Beschreibung der Bewegung des Teilchens wählten die Autoren ein sombreroartiges Potential, siehe Bild 3.9. Zusätzlich zu der großen Potentialbarriere in der Mitte des Sombreros gibt es zusätzlich jeweils zwei Potentialmaxima und -minima in der „Hutkrempe“. Beim bisherigen eindimensionalen Tunnelmodell müsste das Teilchen durch die hohe Potentialbarriere in der Mitte tunneln, in Bild 3.9 durch den Schnitt in Blickrichtung angedeutet. Jetzt hat das Teilchen zusätzlich noch die energetisch günstigere Möglichkeit, die Potentialmulde durch eine kreisförmige dreidimensionale Bewegung in der „Hutkrempe“ zu wechseln.

Auf das Teilchen mit der Masse m und der Ladung q wirkt einerseits die Lorentzkraft des Magnetfeldes in z -Richtung $\mathbf{B} = (0, 0, B)$, andererseits die Rückstellkraft des Potentials V , mit dem Radius r_V der „Hutkrempe“. Das System läßt sich in Zylinderkoordinaten (r, ϑ, z) am besten beschreiben, daher ist die symmetrische Eichung $\mathbf{A} = (0, Br/2, 0)$ angebracht. In schwachen magnetischen Feldern ($B \ll \hbar/qr_V^2$), überwiegt die Kraft des elektrostatischen Potentials die Lorentzkraft und das Problem kann auf einen eindimensionalen Ring mit Radius r reduziert werden. Der Hamiltonoperator ist dann [Ket99]:

$$H = \frac{1}{2m} \left(-i\hbar \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \vartheta} - qA_\vartheta \right) + V(\vartheta) , \quad (3.103)$$

wobei der eingeschlossene magnetische Fluß $\Phi = 2\pi r A_\vartheta = \pi B r^2$ ist. Ein symmetrisches Doppelmuldenpotential kann durch ein Cosinuspotential $V(\vartheta) = V \cos(2\vartheta)$ dargestellt werden. Mit diesem Potential und der Eichtransformation der Wellenfunktion geht die Schrödingergleichung in die Mathieu-Funktion über. Diese kann, mit der Randbedingung

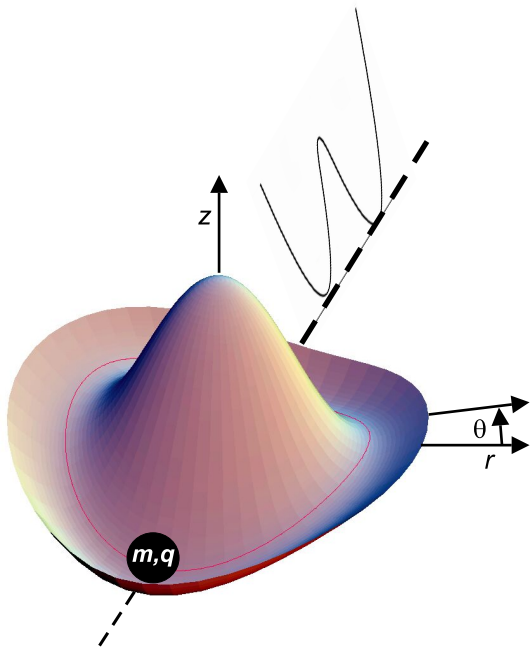


Bild 3.9: Modell für das Potential eines dreidimensionalen Tunnelmodells. Das Teilchen mit der Masse m und der Ladung q bewegt sich im Potential auf der eingezeichneten Bahn mit Radius r_V . Die gestrichelte Linie deutet einen Schnitt durch das Sombrero-potential an. Entlang der Schnittlinie erhält man das Potential des eindimensionalen Standardtunnelmodells, siehe Bild 3.1.

der Periodizität $\Phi(\vartheta + 2\pi) = \Phi(\vartheta)$ für bestimmte Werte von E/a mit $a = \hbar^2/(2mr^2)$ gelöst werden. Die zwei niedrigsten Eigenwerte sind für verschiedene Verhältnisse Φ/Φ_0 mit dem Flußquantum:

$$\Phi_0 = \frac{h}{q}, \quad (3.104)$$

in Bild 3.10 dargestellt. Die Energieeigenwerte variieren demzufolge flußperiodisch. Jeder Eigenzustand trägt einen persistenten Tunnelstrom entgegengesetzter Polarität. Im Magnetfeld verschwindet die Summe dieser Tunnelströme nicht und das Zweiniveausystem trägt dann ein magnetisches Moment.

Die Dynamik kann im allgemeineren Fall eines asymmetrischen Doppelmuldenpotentials analog zur Beschreibung der Dynamik im Standardtunnelmodell vorgenommen werden, mit dem Unterschied, daß die Tunnelaufspaltung Δ_0 durch eine flußperiodische Größe $t(\Phi) = \Delta_0 \cos(\pi\Phi/\Phi_0)$ ersetzt wird. Dadurch wird auch die Energieaufspaltung (3.60) flußperiodisch:

$$\tilde{E} = \sqrt{\Delta^2 + t(\Phi)^2}, \quad (3.105)$$

ebenso wie die minimale Tunnelaufspaltung:

$$t_{\min}(\Phi) = \Delta_{0,\min} \cos\left(\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}\right). \quad (3.106)$$

Da diese in die Berechnung des resonanten Beitrages zur Kapazitätsänderung (3.95) eingeht, kann dieser ebenfalls flußperiodisches Verhalten zeigen. Es gibt Maxima in der Kapazitätsänderung, wenn die minimale Tunnelaufspaltung $t_{\min}(\Phi)$ verschwindet, d. h. wenn $\Phi/\Phi_0 = (2n + 1)/2$, $n = 0, 1, 2, \dots$

Allerdings muß – wie die Autoren betonen – beachtet werden, daß es sich bei dem magnetischen Fluß Φ um einen effektiven Fluß handelt. Es ist also eine Mittelung über die Orientierungen und Ladungen der Zweiniveausysteme erforderlich, um eine Aussage über das oszillatorische Verhalten der dielektrischen Eigenschaften zu gewinnen. Auf weitere Implikationen dieses Modells wird im konkreten Fall der Untersuchungen von BaO-Al₂O₃-SiO₂ und BK7 im Magnetfeld eingegangen, siehe dazu Abschnitt 6.4.

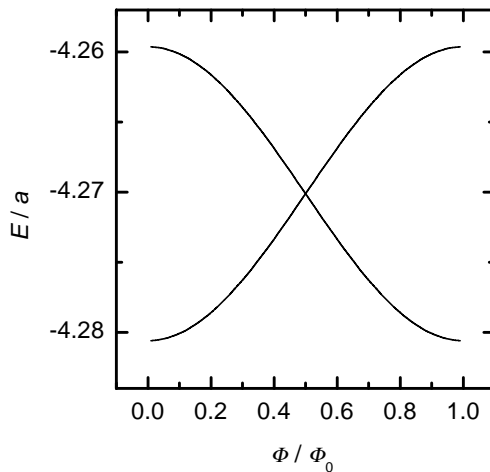


Bild 3.10: Die zwei niedrigsten Energieeigenwerte des Sombromodells als Funktion des magnetischen Flusses Φ/Φ_0 .

4 Experimentelles

Nachdem im vorigen Kapitel die theoretischen Grundlagen dieser Arbeit behandelt wurden, geht dieses Kapitel auf den experimentellen Teil der Arbeit ein. Es werden der eingesetzte Kryostat, die Meßeinrichtungen und die Probenpräparation beschrieben.

4.1 Erzeugung ultratiefer Temperaturen

Die Erzeugung ultratiefer Temperaturen im Millikelvin-Bereich wird durch eine Kombination verschiedener Kühlverfahren bewerkstelligt. Der Kryostat ist in ein Bad aus flüssigem Helium mit einem Siedepunkt von rund 4.2 K eingetaucht. Durch Abpumpen des verdampfenden Gases kann die Temperatur von flüssigem ^4He auf unter 1 Kelvin erniedrigt werden¹. Eine bessere Ausnutzung der Verdunstungsenthalpie kann realisiert werden, wenn statt des Bades nur ein kleiner, thermisch isolierter Topf mit flüssigem ^4He (sog. 1-K-Topf) bepumpt wird. Dieser kann über eine Impedanz aus dem ^4He -Bad befüllt werden. Setzt man statt ^4He das seltene Isotop ^3He (Häufigkeit in natürlichen Ressourcen: 1 ppm) ein, dann kann die Temperatur durch Abpumpen bis auf unter 300 mK abgesenkt werden. Dies liegt daran, daß aufgrund der kleineren Masse ^3He eine größere Nullpunktsenergie und damit einen wesentlich höheren Dampfdruck als ^4He aufweist (siehe Bild 4.1). Außerdem bildet ^3He bei diesen Temperaturen keinen suprafluiden Film aus, der Wärme von Komponenten höherer Temperatur in das Tieftemperatursystem tragen kann. In Tabelle 4.1 sind die wichtigsten Eigenschaften der beiden stabilen Heliumisotope gegenüberegestellt.

		^3He	^4He
Siedepunkt	T_b [K]	3.19	4.21
Kritische Temperatur	T_c [K]	3.32	5.20
Kritischer Druck	p_c [kPa]	116	229
Suprafluider Übergang	T_s [mK]	2.5	2177
Dichte der flüssigen Phase	ρ [kg/m ³]	82	145
Schmelzdruck	p_m [kPa]	3439	2536

Tabelle 4.1: Eigenschaften der stabilen Helium-Isotope ^3He und ^4He [Pob96].

¹H. Kammerlingh-Onnes erreichte im Jahre 1926 eine Temperatur von 0.7 K durch abgepumptes ^4He .

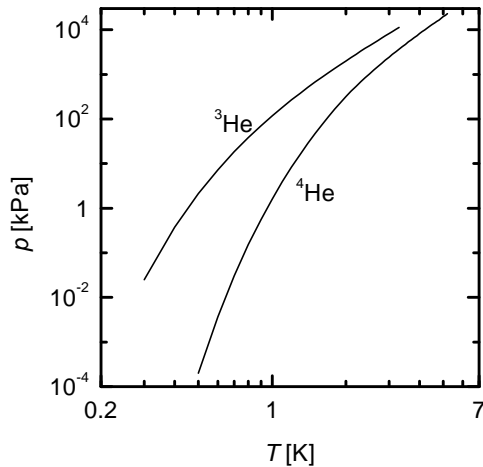


Bild 4.1: Dampfdruck der beiden Helium-Isotope. [Pob96]

Die Kühlleistung durch abgepumpte Flüssigkeiten hängt von zwei Parametern ab, dem erreichbaren Enddruck über dem Bad und der Temperatur. Die Temperaturabhängigkeit der Kühlleistung ist gegeben durch [Ens00]:

$$\dot{Q} \propto e^{-\frac{L}{RT}}, \quad (4.1)$$

mit der latenten Wärme pro Mol L und der molaren Gaskonstanten R . Wie am Temperaturverlauf der durch abgepumptes ^3He erreichbaren Kühlleistung in Bild 4.4 erkennbar ist, nimmt die Kühlleistung unterhalb von 300 mK sehr schnell ab. Um tiefere Temperaturen zu erreichen, muß demnach nach einem anderen Kühlverfahren gesucht werden.

4.1.1 ^3He - ^4He -Verdünnungskühlung

Bei der ^3He - ^4He -Verdünnungskühlung wird eine Anomalie im Phasenverhalten von Mischungen der beiden Helium-Isotope ausgenutzt. Unterhalb von 0.87 K stellt sich eine spontane Phasentrennung ein, wie am Phasendiagramm von ^3He - ^4He -Mischungen in Bild 4.2 erkennbar ist. Im schattiert eingezeichneten Gebiet existieren zwei Phasen verschiedener ^3He -Konzentrationen gleichzeitig: Eine ^3He -reiche und eine ^3He -arme Phase. (Im Folgenden als *konzentrierte* und *verdünnte* Phase bezeichnet.)

Die konzentrierte Phase schwimmt aufgrund ihrer geringeren Dichte auf der verdünnten Phase. Für Temperaturen $T \rightarrow 0$ geht die ^3He -Konzentration in der konzentrierten Phase gegen 100 %. In der verdünnten Phase hingegen geht die ^3He -Konzentration für $T \rightarrow 0$ nicht gegen Null, sondern nähert sich einem festen Wert an – bei Normaldruck 6.5 %, eine Besonderheit, welche die Verdünnungskühlung ermöglicht. Wird der verdünnten Phase ^3He entzogen, dann diffundieren aus der konzentrierten Phase ^3He -Atome, um das Mischungsverhältnis zu erhalten. Da allerdings die Enthalpie von ^3He in der verdünnten Phase größer ist als in der konzentrierten Phase, wird der Mischung beim Übergang von ^3He -Atomen in die verdünnte Phase Wärme entzogen.

In der technischen Realisierung dieses Prinzips (siehe Bild 4.3) wird das Gemisch aus der verdünnten Phase über eine Steigleitung in ein eigenes Gefäß geleitet, den *Verdamp-*

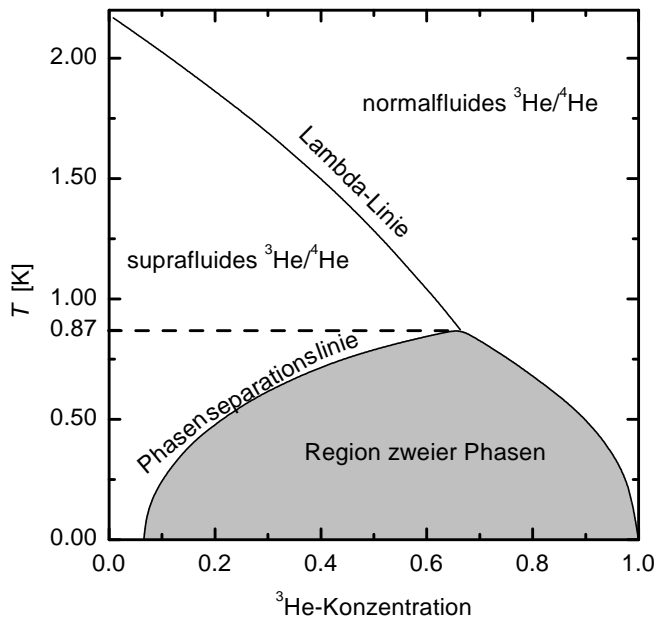


Bild 4.2: Phasendiagramm von ^3He - ^4He -Mischungen. Eingezeichnet ist die Lambda-Linie des suprafluiden Übergangs von ^4He sowie die Phasenseparationslinie, unterhalb derer sich die Mischung in eine konzentrierte und eine verdünnte ^3He -Phase separiert.

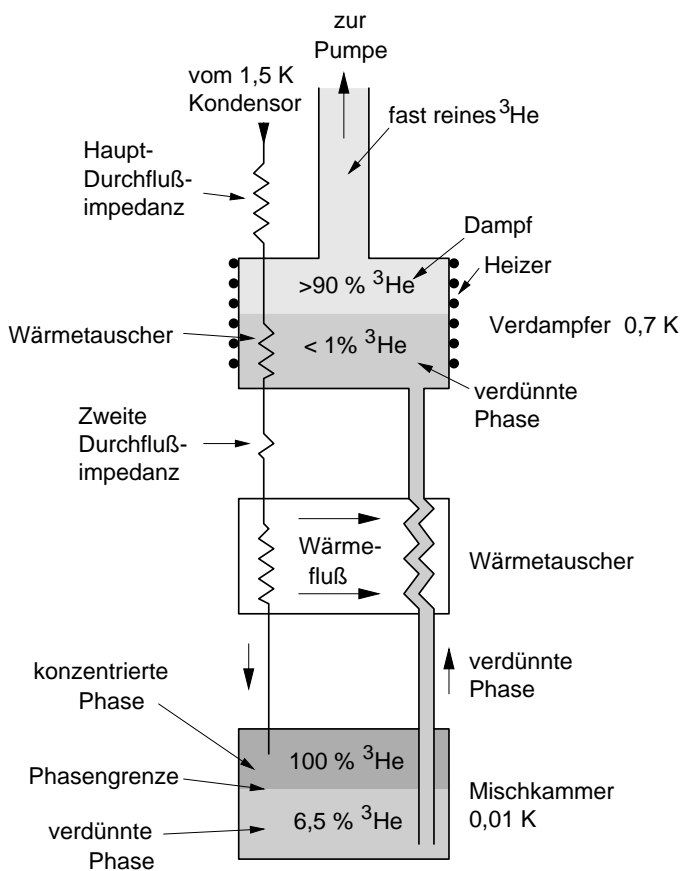


Bild 4.3: Funktionsprinzip eines Verdünnungskryostaten. Aus [Ens00].

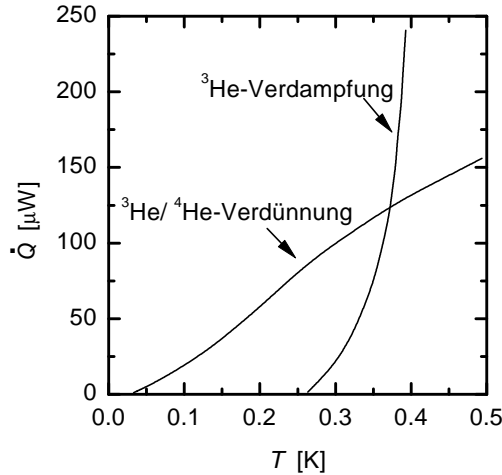


Bild 4.4: Vergleich der Temperaturabhängigkeit der Kühlleistungen von ^3He -Verdampfung und ^3He - ^4He -Verdünnungskühlung unter der Annahme derselben Zirkulationsrate.

fer. Dort wird auf eine höhere Temperatur geheizt (üblicherweise $\approx 0.7\text{ K}$), bei der der ^3He -Dampfdruck den des ^4He bei weitem überwiegt (siehe Bild 4.1). Durch Pumpen an der Verdampferleitung wird fast reines ^3He gepumpt. Aufgrund des osmotischen Drucks fließt aus der Mischkammer ^3He nach.

Das abgepumpte ^3He -Gas wird gereinigt und über Vorkühlschritte bei 4.2 K und 1.5 K , sowie einer Durchflußimpedanz wieder einkondensiert. Anschließend wird das flüssige ^3He durch thermische Ankopplung am Verdampfer und durch Wärmetauscher möglichst effektiv vorgekühlt, bevor es die Mischkammer erreicht.

Die Kühlleistung eines Verdünnungskryostaten wird hauptsächlich durch den ^3He -Durchfluß n_3 und die Effizienz seiner Wärmetauscher bestimmt:

$$\dot{Q} = n_3 (95 T_{\text{MK}}^2 - 11 T_{\text{WT}}^2) , \quad (4.2)$$

wenn T_{MK} bzw. T_{WT} die Temperaturen von Mischkammer bzw. kältestem Wärmetauscher sind. Die Verdünnungskühlung arbeitet unterhalb einer Temperatur von 350 mK wesentlich effektiver als die ^3He -Verdampfungskühlung, wie im Vergleich der Kühlleistungen in Bild 4.4 erkennbar ist.

Die tiefste erreichbare Temperatur wird neben der Kühlleistung auch von *Wärmelecks* bestimmt. Diese Wärmeeinträge können von internen Quellen wie radioaktiven Materialien und amorphen Materialien mit schlechter Wärmeleitung verursacht werden. Die größeren Beiträge sind allerdings meistens Wärmeeinträge durch Wärmeleitung und Strahlung von Komponenten höherer Temperatur, z. B. durch Meßleitungen und Rohre, und Wärmeeinträge durch Vibrationen. Außerdem kann der Betrieb der Experimente Wärme erzeugen, beispielsweise durch Verlustleistungen bei Widerstandsmessungen.

4.1.2 Die Mikrokelvinanlage MKA 3

Um die Ziele dieser Arbeit zu erreichen, mussten folgende Anforderungen an den verwendeten Kryostaten gestellt werden:

- minimale Temperatur von 5 mK,
- Magnetfelder bis 8 T,
- große Kühlleistung, um die beim Verändern des Magnetfeldes durch Wirbelstromheizung erzeugte Wärme abzuführen,
- gute Schirmung gegen elektrische Einstrahlungen und
- gute Schwingungsisolierung zur Unterdrückung von Mikrophonieeffekten.

Wie in Abschnitt 2.2.1 beschrieben, wurden erste Nachweise der Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität von BaO-Al₂O₃-SiO₂ durch Herrn Strehlow an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt ² (PTB) erbracht. Da außerdem die Untersuchung von Gläsern Bedeutung für die Tieftemperaturthermometrie hat, wurden die Experimente in enger Kooperation mit der PTB durchgeführt. Dazu stand an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt die sich im Bau befindliche Mikrokelvinanlage MKA 3 zur Verfügung. Wie im Namen ersichtlich, war diese Anlage konzipiert, um ultratiefe Temperaturen von unter 50 μ K im Dauerbetrieb zu gewährleisten. Geplant ist, einen zweistufigen Kernentmagnetisierungskryostaten an den Verdünnungskryostaten anzubauen.

Für Messungen im Magnetfeld wurde ein Magnet der Kernstufe zweckentfremdet. Neben der Vorbereitung der Experimenten mußten deshalb folgende Aufgaben am MKA 3 erfüllt werden:

- Fertigstellung und Test des Gashandlingssystems der MKA 3,
- Aufbau der Thermometrie und Datenerfassung,
- Inbetriebnahme der MKA 3 als Verdünnungskryostat,
- Einbau und Inbetriebnahme des zweistufigen 9 T-Magneten und
- Einrichten einer Experimentierplattform zur Durchführung der geplanten Experimente.

4.1.2.1 Genereller Aufbau

Eine Schemazeichnung der MKA 3 ist in Bild 4.5 abgebildet. Das Herzstück der MKA 3, der Verdünnungskryostat, besteht aus einem kommerziellen Verdünnungskryostateinsatz (siehe folgenden Abschnitt), der in einem Badkryostat montiert ist. Der Kryostat hängt in einem optischen Tisch³, der mit Hilfe von pneumatischen Dämpfern von der Auflage schwingungsentkoppelt ist. Zur weiteren Dämpfung von Gebäudeschall steht der Tisch auf einem Sockel (Gewicht ca. 30 Tonnen), der direkt auf dem Fundament des Gebäudes ruht. Um ein Aufmagnetisieren durch den Betrieb des Magneten zu verhindern, besteht die Armierung dieses Sockels aus nichtmagnetischem Stahl.

²Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Institut Berlin, Abbeinstr. 2-12, 10587 Berlin

³Type XL-B von Newport Corp., Fontain Valley, California, USA

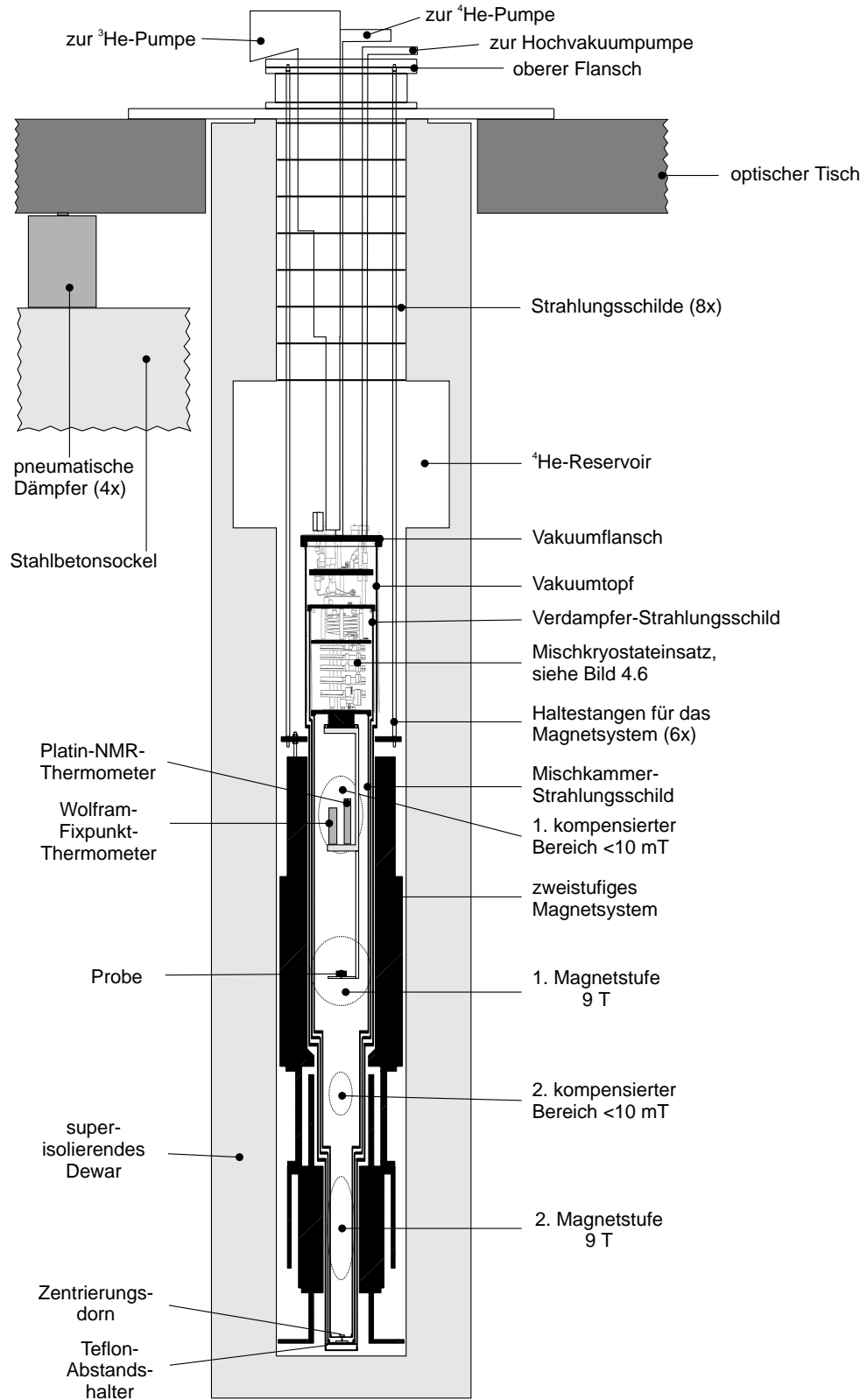


Bild 4.5: Schematischer Aufbau der MKA3. Eine nähere Beschreibung ist im Text gegeben.

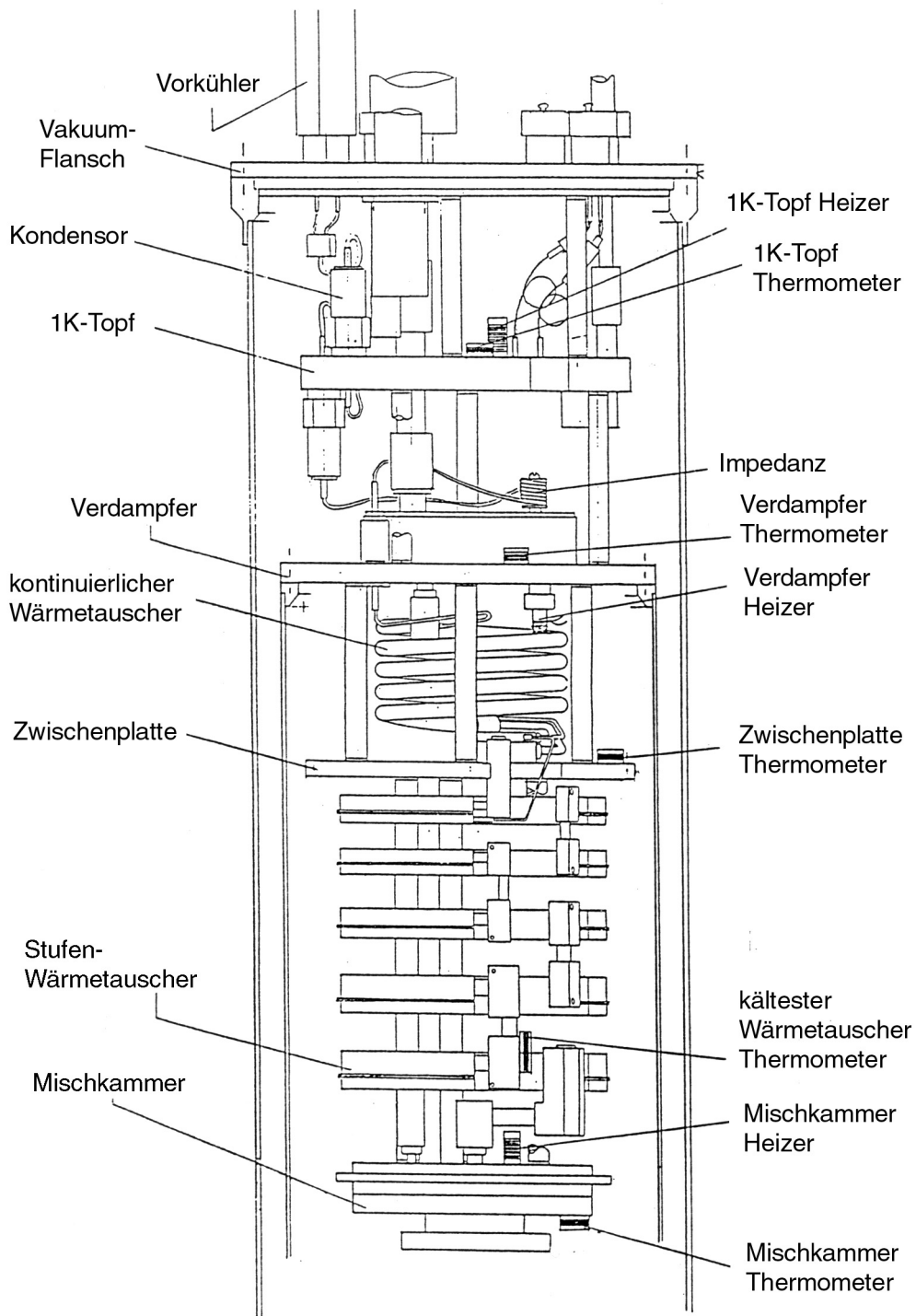


Bild 4.6: Verdünnungskryostateinsatz DRI 550 des MKA 3 (aus [Cry89]).

Ein superisolierendes Dewar⁴, das am optischen Tisch montiert wird, nimmt das Heliumbad auf. Um den Heliumverbrauch durch thermische Strahlung zu minimieren, befinden sich acht Strahlungsschilde zwischen dem oberen Flansch bei Raumtemperatur und der ⁴He-Flüssigkeitsoberfläche. Zwischen dem untersten Strahlungsschild und dem Flansch des Vakuumpotfes hat das Dewar einen größeren Innendurchmesser, so daß in diesem Bereich ein ⁴He-Reservoir von rund 64 ℓ vorhanden ist. Dies sollte eine Standzeit zwischen zwei Befüllungen von mehreren Tagen ermöglichen.

Der Verdünnungskryostat ist zur Abschirmung der Experimente vor hochfrequenter Einstrahlung in einer HF-geschirmten Kabine eingebaut (siehe Abschnitt 4.1.2.4). Sämtliche Pumpen und ein Großteil der Ventile und Druckmeßeinrichtungen befinden sich deshalb außerhalb der Kabine und im Keller des Gebäudes.

4.1.2.2 Verdünnungskryostateinsatz

Bild 4.6 zeigt den Verdünnungskryostateinsatz. Der Vakuumpotf mit dem daran montierten Vakuumpotf ist in flüssiges ⁴He eingetaucht. Im 1 K-Potf wird Kühlung auf eine Temperatur von rund 1.5 K durch Abpumpen von flüssigem ⁴He bis auf einen Druck von rund 10 mbar erreicht. Der 1 K-Potf wird durch eine Kapillare mit Sinterfilter aus dem ⁴He-Bad kontinuierlich nachgefüllt. Abpumpen von ³He bis auf einen Druck von 0.01 mbar kühlt den Verdampfer auf rund 700 mK. Die Temperatur am Verdampfer könnte noch weiter gesenkt werden, da allerdings dann die Zirkulationsrate des ³He und damit die Kühlleistung an der Mischkammer (siehe Gleichung (4.2)) ebenfalls sinken würde, heizt man den Verdampfer. Mittels eines kontinuierlichen und fünf Stufenwärmetauschern wird das in die Mischkammer strömende ³He vorgekühlt. Zur besseren thermischen Kontaktierung mit der ³He-⁴He-Mischung ist die aus vergoldetem Kupfer bestehende Mischkammer mit Silbersinter gefüllt.

Das einströmende gasförmige ³He wird am Vorkühler auf eine Temperatur von 4.2 K gekühlt. Durch den Kondensator, eine Kapillare und einen typischen Einkondensierdruck von 100 mbar wird die Verflüssigung erreicht. Zur weiteren Vorkühlung ist die Einfüllkapillare am 1 K-Potf und am Verdampfer thermisch angekoppelt. Um den Wärmefluß von Komponenten höherer Temperatur zu den kälteren Stufen zu minimieren, sind alle Pumpleitungen aus dünnwandigen Edelstahlrohren ausgeführt. Die mechanischen Verbindungen bestehen entweder aus Edelstahlröhrchen (zwischen Vakuumpotf, 1 K-Potf und Verdampfer) oder aus Vespel-Zylindern (zwischen Verdampfer, Zwischenplatte und Mischkammer).

Ebenfalls zur Reduzierung des Wärmelecks sind die elektrischen Leitungen an jeder Stufe thermisch angekoppelt. Es kommen durchweg Drähte mit geringer thermischer Leitfähigkeit zum Einsatz: Manganin und supraleitende Nb/Ti-in-Cu/Ni Leitungen.

Neben Wärmeleitung erzeugt auch thermische Strahlung ein Wärmeleck am Kryostaten. Dieses Wärmeleck kann durch ein am Verdampfer montiertes Strahlungsschild

⁴Kadel Engineering, Danville, Indiana, USA, Volumen rund 300 ℓ

reduziert werden. Das Strahlungsschild schirmt den Tieftemperaturteil des Kryostaten vor der Wärmestrahlung des Vakuumpfes ab. An der MKA 3 ist zusätzlich ein Strahlungsschild an der Mischkammer montiert, welches die Experimente und eine zukünftige Kernstufe von der Wärmestrahlung des Verdampfer-Strahlungsschildes ($T \approx 700$ mK) abschirmt.

Die vorhandenen Strahlungsschilde waren ebenso wie der Vakuumpf nicht auf die Bohrungen des zweistufigen Magneten abgestimmt, deshalb mußten angepaßte Strahlungsschilde und ein Vakuumpf neu konstruiert werden. Die Fertigung erfolgte in der mechanischen Werkstatt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt. Um die beim Hochfahren des Magnetfeldes erzeugte Wirbelstromwärme zu verringern, wurde nach einem Material schlechter elektrischer Leitfähigkeit gesucht. Die Strahlungsschilde sind aus Messing Ms58 (CuZn39Pb3) gefertigt. Bei der Materialwahl für den neuen Vakuumpf wurde auf eine möglichst geringe Magnetisierbarkeit geachtet, deshalb kam der unmagnetische Edelstahl 1.4429 zum Einsatz.

Da ein ausreichender Abstand zwischen Vakuumpf, Verdampfer-Strahlungsschild und Mischkammer-Strahlungsschild über eine Länge von 2 m (Abstand Flansch – Boden) nicht alleine durch korrekte Justage am Flansch gewährleistet werden kann, mussten Abstandshalter montiert werden. Beim Verdampfer-Strahlungsschild ist am Boden eine sternförmige Platte aus Teflon befestigt, durch deren Spitzen das Strahlungsschild im Vakuumpf zentriert wird. Das Mischkammer-Strahlungsschild besitzt am Boden einen Dorn aus Edelstahl, dieser faßt in eine Teflon-Aufnahme im Inneren des Verdampfer-Strahlungsschildes.

4.1.2.3 Gashandlingssystem

Die MKA 3 ist spezifiziert für einen maximalen ^3He -Durchfluß von 3 mmol/s. Um diesen hohen Durchfluß zu gewährleisten, muß das Gashandlingssystem entsprechend dimensioniert sein und Pumpen genügenden Saugvermögens bereitstehen. Tabelle 4.2 gibt eine Auflistung der Baugruppen mit einer kurzen Erläuterung zu deren Funktion und Spezifikation.

Um von den mechanischen Pumpen erzeugte Schwingungen nicht auf den Kryostaten zu übertragen, sind sämtliche Pumpleitungen mit Hilfe hochflexibler Federbälge schwingungsentkoppelt. Da es sich hierbei um Leitungen mit Nennweiten bis 250 mm handelt, wurden die Federbälge eigens angefertigt⁵. Zur Verhinderung von Masseschleifen wurde darauf geachtet, daß es keine Masseverbindung zwischen den Komponenten außerhalb der Kabine und dem Kryostaten gibt. Dies konnte durch den Einsatz von Keramikdurchführungen und Plastik- und Gummieinsätzen zwischen den Rohren erreicht werden.

⁵COMVAT von VAT, Grasbrunn, <http://www.comvat.com>.

Modul	Bezeichnung	Modell	Spezifikation	Funktion	Lage
MKE	Mischkryostateinsatz	CryoVac DRI 550		Erzeugung von ultratiefen Temperaturen	Kabine
BOP	Boosterpumpe	Edwards 18B4A	Saugverm.: 4000 ℓ /s	Abpumpen des ^3He -Gases am Verdampfer	Halle
RVP	Rootsvorpumpe	Alcatel RSV 350	Saugverm.: 350 m^3/h	2. Vorpumpe	Keller
DVP	Drehschiebervorpumpe	Alcatel 2063H	Saugverm.: 63 m^3/h	1. Vorpumpe	Keller
NKF	LN_2 -Kühlfallen	Oxford	Füllung: Aktivkohle	Reinigung ^3He - ^4He -Gas	Halle
HKF	L^4He -Kühlfallen	Eigenbau	Füllung: Cu-Späne	Reinigung ^3He - ^4He -Gas	Kabine
CP	Coldplate	CryoVac	Nadelventil, kontinuierliche Befüllung		Kabine
EKP	1 K-Topf Pumpe	Alcatel 2063	Saugverm.: 63 m^3/h	Abpumpen ^4He in der Coldplate	Keller
IVC	Isolation vacuum can	Eigenbau	Vol.: 40 ℓ	Isoliervakuum zwischen Dewar und Verdünnungskryostateinsatz	Kabine
HVP	Hochvakuumpumpe	Alcatel – Diffusionspumpe Crystal 100 Drehschieberp. 2012A	Saugverm.: 63 m^3/h	Abpumpen des Vakuumpotfes	Halle
BKS	Badkryostatensystem	Kadel Eng. Dewar	Saugverm.: 12 m^3/h	Vorpumpe	Keller
VBM	Vorratsbehälter Mischung	Aluminium Bierfässer	Vol.: 300 ℓ Gesamtvol.: 500 ℓ	superisolierend Vorratsbehälter für ^3He - ^4He -Gas	Kabine Keller
RGV	Reinstgasversorgung	^4He - u. Stickstoff-Druckflaschen ^3He Aluminium Bierfasseto 491 Flügelradanometer	50 ℓ (à 200 bar) 501	Schutzgas und zur Reinigung von Dewar oder Pumpleitungen u. a. als Kontaktgas im IVC Messen des ^4He -Gasdurchsatzes	Keller Keller Halle
GSZ	Gaszähler				
GVP	Grobvakuumpumpe	Alcatel – Drehschieberpumpe 2012A	Saugverm.: 12 m^3/h	flexibler Einsatz: Evakuieren von Kühlfallen, u. a.	Keller

Tabelle 4.2: Baugruppen der MKA 3.

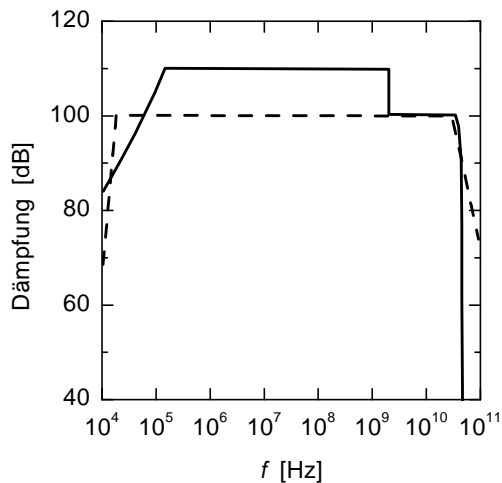


Bild 4.7: Frequenzabhängigkeit der Dämpfung von HF-geschirmter Kabine (durchgezogene Linie) und Netzfilter (gestrichelte Linie) an der MKA 3. Dämpfungen der Kabine größer 110 dB bzw. 100 dB für Frequenzen über 2 GHz sind nicht meßbar. Die Meßgrenze der Dämpfung des Filters liegt bei 100 dB. [Sie85]

4.1.2.4 HF-Schirmung

Da hochfrequente Einstrahlung die Experimente stören und Widerstandsthermometrie bei ultratiefen Temperaturen unmöglich machen würde, ist der Kryostat in einer HF-geschirmten Kabine⁶ eingebaut. Die Netzspannungsversorgung wird über ein steilflankiges Netzfilter⁷ in die Kabine geleitet. Der Darstellung der Dämpfung von Kabine und Netzfilter in Bild 4.7 kann entnommen werden, daß vor allem Frequenzen über 10 kHz sehr gut abgeschirmt werden. Allerdings dringen niedrige Frequenzen unter 1 kHz relativ ungehindert durch die Kabine, da diese keine magnetische Schirmung aufweist.

Am gleichen Verteilerstrang der Netzversorgung sind im Nachbargebäude ein gepulster NMR-Magnet und ein Hochleistungslaser angeschlossen. Diese Geräte verursachen Störungen der Meßgeräte durch niederfrequente Spannungsschwankungen und Phasendrehungen. Da das Netzfilter nur Frequenzen oberhalb 10 kHz effektiv filtert (siehe Bild 4.7), konnten die Störungen durch das Netzfilter nicht verhindert werden. Zur Abhilfe wurde zusätzlich eine Netzphase in die Kabine gelegt, die über eine unterbrechungsfreie Stromversorgung vom Netz getrennt ist. Bei der Stromversorgung handelt es sich um eine sog. *Online-UPS*⁸. Die Verbraucher werden bei diesem Typus mittels Wechselrichter aus einer Batterie gespeist, die wiederum über das Stromnetz aufgeladen wird. Dies gewährleistet eine rein sinusoidale Netzspannung ohne Störungen.

4.2 Messung tiefer Temperaturen

Für den Temperaturbereich von Raumtemperatur bis 30 mK werden an der MKA 3 Widerstandsthermometer eingesetzt. Im Tieftemperaturbereich kommt ein Platin-NMR-Thermometer zum Einsatz. Zur Überprüfung der Kalibration des NMR-Thermometers

⁶HF-geschirmte Kabine bis 35 GHz, Siemens AG, München

⁷Typ B84299-G9H-E3, Siemens AG, München

⁸Typ: Xanto S6000, Online-UPS, Nennleistung: 6 kVA

und zur genauen Regelung auf eine feste Temperatur ist ein Wolfram-Sprungpunkt-Thermometer (Supraleitungs-Sprungtemperatur $T_c = 15.4 \text{ mK}$) eingebaut.

4.2.1 Widerstandsthermometer

Widerstandsthermometer sind die am häufigsten eingesetzten Sekundärthermometer in Tieftemperaturanwendungen. Am MKA 3 werden verschiedene Typen eingesetzt, siehe dazu Tabelle 4.3.

4.2.1.1 Germanium

Halbleiter weisen einen mit sinkender Temperatur steigenden Widerstand auf. Bei tiefen Temperaturen beruht die elektrische Leitfähigkeit von dotierten Halbleitern hauptsächlich auf dem sog. *variable range hopping*. Bei diesem Vorgang wird der Ladungstransport durch quantenmechanisches Tunneln der Elektronen in einem „Störstellenband“ bestimmt.

Durch geeignete Dotierung kann ein Germanium-Thermometer für den Tieftemperaturbereich bis 10 mK präpariert werden. Die Temperaturabhängigkeit des Widerstandes folgt bei tiefen Temperaturen allerdings keiner einfachen Beziehung, sondern muß durch Kalibration bestimmt werden.

Am MKA 3 wird ein kommerzielles Germanium-Thermometer der Firma Lakeshore eingesetzt. Dieses ist für Temperaturen zwischen 8 K und 40 mK kalibriert.

4.2.1.2 RuO₂

RuO₂-Dickfilmwiderstände bestehen aus einer Metall-Keramik-Mischung aus leitendem RuO₂, Bi₂RuO₂ und einem Bleisilikatglas (PbO-B₂O₃-SiO₂), welches über seine Glasübergangstemperatur⁹ erhitzt wurde. Die Steigung ihrer negativen R-T-Kennlinie kann durch Veränderung des Metall/Glas-Verhältnisses angepaßt werden. Die Vorteile der RuO₂-Dickfilmsensoren im Einsatz als Tieftemperaturthermometer sind:

- kleine Abmessungen und damit auch kleine thermische Masse
- gute Reproduzierbarkeit bei wiederholtem Zykeln zwischen Raumtemperatur und Tieftemperatur
- geringe Abweichungen innerhalb einer Charge
- kleiner Magnetowiderstand, deshalb wurde bei den Messungen in Grenoble ein RuO₂-Thermometer eingesetzt.

An der MKA 3 wird ein kommerzielles RuO₂-Thermometer der Firma Oxford eingesetzt. Im Temperaturbereich zwischen 19 mK und 9 K ist dieses Thermometer mit einer

⁹Bei der Glasübergangstemperatur T_g findet beim Abkühlen der Schmelze der Übergang von einer unterkühlten Flüssigkeit zum Glas statt. Aufgrund der hohen Viskosität kann die Substanz unterhalb dieser Temperatur nicht mehr kristallisieren.

Typ	Hersteller	Nennwiderstand (Ω)	Montageort
Kohle	Allen-Bradley	110	1 K-Topf
Kohle	Allen-Bradley	10	Verdampfer
Kohle	Speer	100	Zwischenplatte
Kohle	Speer	100	kältester Wärmetauscher
Kohle	Speer	100	Mischkammer
Kohle	Matsushita, geschliffen	1000	Mischkammer
Germanium	Lakeshore	4	Mischkammer
RuO ₂	Oxford	2000	Mischkammer
RuO ₂		1000	kältester Wärmetauscher
Pt100		100	Mischkammer

Tabelle 4.3: Am MKA 3 eingesetzte Widerstandsthermometer mit Herstellerangabe, Nennwiderstand und Montageort.

Kalibration versehen. Leider wurde die Kalibration mit einer Anregungsspannung der Meßbrücke von $30 \mu\text{V}$ durchgeführt, so daß unterhalb von 30 mK Selbstheizungseffekte auftreten. Da diese Selbstheizung von der thermischen Ankopplung des Thermometers und der Meßleitungen abhängt, war die Kalibration an der MKA 3 nicht reproduzierbar. Deshalb wurde das RuO₂-Thermometer nur bis zu einer Temperatur von 30 mK eingesetzt.

Zusätzlich sind noch drei weitere RuO₂-Thermometer im Einsatz, die mit einer Kalibration versehen wurden. Diese werden hauptsächlich zur Betriebsthermometrie eingesetzt.

4.2.1.3 Kohle

Der negative Widerstands-Temperatur-Koeffizient von Kohlewiderständen ist keine Materialeigenschaft, sondern eine Folge des Herstellungsprozesses. Ein Kohlewiderstand besteht aus kleinen Kohlepartikeln, die gepreßt und gesintert werden. Die Widerstandscharakteristik wird hauptsächlich durch den Kontaktwiderstand der Partikel hervorgerufen. Dies hat allerdings auch zur Folge, daß sich die Kalibration von Abkühlvorgang zu Abkühlvorgang ändert, da Verformungen durch thermische Spannungen auftreten.

An der MKA3 werden verschiedene Kohlethermometer zur Betriebsthermometrie eingesetzt. In Tabelle 4.3 sind die verwendeten Thermometer und ihre Montageorte angegeben.

4.2.1.4 Pt100

Eines der am häufigsten für Thermometriezwecke eingesetzten Metalle ist Platin. Dieses Metall weist bei hohen Temperaturen eine lineare R-T-Charakteristik auf, die unterhalb einer Temperatur von 50 K deutlich abflacht. An der MKA 3 ist ein Standard-Pt100-Widerstand eingebaut. Dieser hat bei einer Temperatur von 0 °C einen Widerstand von 100 Ω und ist bis zu Temperaturen unter 20 K einsetzbar.

4.2.2 Temperaturmessung und -regelung

Die Temperaturmessung am MKA 3 erfolgt sowohl mittels Eigenbau-Meßbrücken als auch über eine automatische Widerstandsmeßbrücke vom Typ AVS-47.¹⁰ Durch die niedrigen Anregungsspannungen der Brücke bis 3 μV werden Temperaturfehler durch Selbstheizung des Sensors weitgehend ausgeschlossen.

Als Regelsensor wurde ein geschliffener Kohlewiderstand auf dem Probenhalter montiert (siehe Tabelle 4.3). Dieser wurde mittels einer Eigenbau-Leitfähigkeitsmeßbrücke ausgelesen. Mit Hilfe einer Software-PID-Regelung und selbstgebaute Netzteile wird ein bifilar gewickelter Widerstandsheizler ($R \approx 470 \Omega$) auf der Mischkammer betrieben.

Da sich der Widerstand des Kohlesensors durch thermische Spannungen bei jedem Abkühlzyklus geringfügig ändert, erfolgte die Temperaturmessung mit Hilfe der AVS 47-Brücke über den in Abschnitt 4.2.1.2 beschriebenen kalibrierten RuO₂-Sensor. Mit diesem Aufbau konnte eine typische Temperaturstabilität von ±0.03 mK erreicht werden.

Außerdem bestand die Möglichkeit einer Temperaturregelung auf den Sprungpunkt von Wolfram ($T_c = 15.4 \text{ mK}$). Details hierzu sind im Abschnitt 4.2.4 beschrieben.

4.2.3 Platin-NMR-Thermometrie

Momentan stellt die NMR-Thermometrie (NMR – *nuclear magnetic resonance*) die einzige Möglichkeit dar, Temperaturen unterhalb von 1 mK zu messen. Bei diesem Prinzip wird die magnetische Kernsuszeptibilität χ_n von Metallen mit Kernspin I gemessen, die näherungsweise einem Curie-Gesetz (3.27) gehorcht:

$$\chi_n = \frac{\mu_0 N_A g_n^2 \mu_n^2 I(I+1)}{3k_B} \frac{1}{T}, \quad (4.3)$$

mit dem nuklearen g-Faktor g_n und dem Kernmagneton μ_n . Ein für die NMR-Thermometrie geeignetes Material ist Platin, dessen Isotop ¹⁹⁵Pt (natürliche Häufigkeit: 33.8 %) einen Kernspin von 1/2 aufweist. Die übliche – und auch bei uns angewendete – Methode der Suszeptibilitätsmessung ist die gepulste NMR.

Bei dieser Meßmethode wird mit Hilfe einer äußeren Spule ein möglichst homogenes, konstantes Magnetfeld B_z angelegt. Dieses richtet die Kernmagnetisierung \mathbf{M}_n in z-Richtung aus. Senkrecht zur Feldspule ist eine HF-Spule angebracht, in der sich die

¹⁰Picowatt rv-elektronikka oy, Vantaa, Finnland. Meßfrequenz 12.5 Hz.

Platin-Probe befindet. Nun wird über die HF-Spule ein sinusoidales elektromagnetisches Feld eingestrahlt, dessen Frequenz sich in Resonanz mit der Zeeman-Aufspaltung der Kernmomente der Probe befinden muß:

$$\hbar\omega = \frac{g_n\mu_n B_z}{I} \quad (4.4)$$

Durch einen kurzen Puls dieser Frequenz wird die Magnetisierung \mathbf{M}_n aus der z -Richtung ausgelenkt und fängt an, in der x - y -Ebene zu präzedieren. Diese Präzession erzeugt in der HF-Spule – die nun als Detektionsspule benutzt wird – ein Induktionssignal, das sogenannte *free induction decay* (FID). Durch Spin-Spin-Wechselwirkung und Inhomogenitäten des äußeren Feldes verlieren die Kernspins zunehmend die Phasenbeziehung zueinander und das Signal zerfällt. Um Thermometrie zu betreiben, wird das FID-Signal ausgewertet und die Amplitude an zwei Punkten bekannter Temperatur kalibriert. Im Fall eines reinen Curie-Gesetzes würde ein Punkt reichen, meistens ist jedoch noch ein Untergrundsignal zu berücksichtigen.

An der MKA 3 ist eine Platin-Probe der Reinheit 99.998 %, bestehend aus ca. 180 Drähten mit einem Durchmesser von jeweils 0.15 mm eingebaut. Die Probe ist umgeben von der HF-Spule, gewickelt aus Kupferdraht der Stärke 20 μm . Zur thermischen Kontaktierung ist die Platin-Probe mit einem Balken aus Silber hart verlötet und dieser ist im Probenhalter eingeschraubt. Um ein möglichst homogenes Feld zu erzeugen, ist diese Feldspule mit einem „offenem diamagnetischem Zylinder“ nach Hechtfisher [Hec87] versehen. Zur Realisierung dieser Homogenisierung befindet sich im Inneren der Spule eine Wicklung aus Niobfolie. Die Wicklung darf allerdings nicht geschlossen werden, da sonst aufgrund von Abschirmströmen das Feld nicht in das Innere der Spule eindringen kann. Deshalb wird zwischen die Lagen der Niobfolien-Wicklung ein nichtmagnetisches Material gewickelt. Die Spule ist mit einem Niobrohr umgeben, um sowohl gegen äußere Einflüsse als auch die übrigen Experimente vom Feld der Spule abzuschirmen. Die Drähte der Feldspule, bestehend aus einem Nb/Ti-in-Cu Multifilament-Supraleiter¹¹ sind ohne Unterbrechung bis zum IVC-Flansch durchgeführt und dort ohne Isolation weich ein-

Windungsanzahl der Feldspule	1353	
Strom der Feldspule	2.6	A
Länge der Feldspule	80	mm
erzeugtes Feld	28.3	mT
Windungszahl der HF-Spule	600	
Induktivität der HF-Spule	0.5	mH
Frequenz	250	kHz

Tabelle 4.4: Parameter des Platin-NMR-Thermometers am MKA 3.

¹¹Vacyrflux 5001 F60(0,2) von Vaccumschmelze GmbH, Hanau.

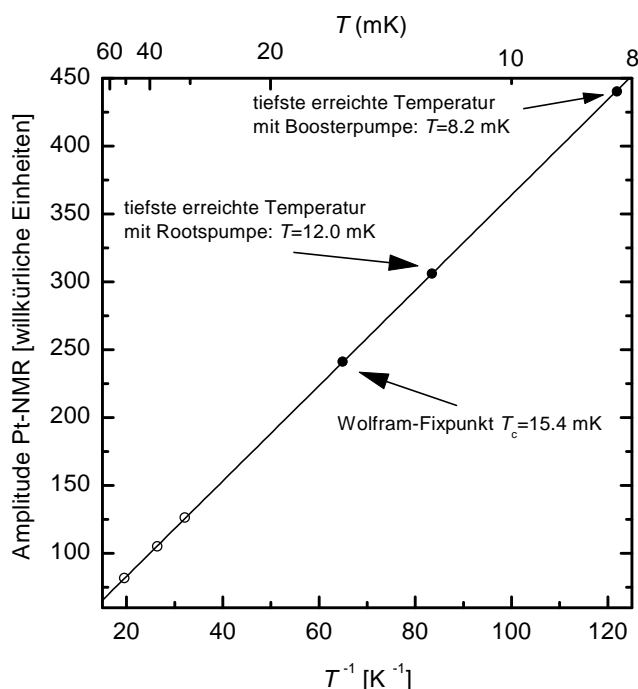


Bild 4.8: Typische Kalibration des Platin-NMR-Thermometers. Neben den mit RuO₂-Thermometrie erhaltenen Kalibrationspunkten (offene Kreise) und dem Amplitudenwert am Wolfram-Sprungpunkt sind die tiefsten erreichten Temperaturen an der MKA 3 eingezeichnet. Der ³He-Durchfluß mit Boosterpumpe war dabei 270 $\mu\text{mol/s}$.

gelötet. Dieser „Kurzschluß“ wirkt als Tiefpaß mit einer Zeitkonstante von rund einer Sekunde und hält hochfrequente Störungen von außerhalb des Kryostaten weitgehend fern. Allerdings trägt der Mantel des Supraleiters – Kupfer – relativ viel Wärme in den Kryostaten, weshalb der Draht aufwendig thermisch abgefangen werden muß. Tabelle 4.4 listet die Parameter des am MKA 3 eingesetzten Platin-NMR-Thermometers auf.

Die Stromversorgung für die Feldspule übernimmt ein hochstabiles Netzteil¹². Mit dem *pulsed NMR controller* PLM 4 der Firma picowatt wird das HF-Signal gepulst und detektiert. Leider erzeugt dieses Gerät elektromagnetische Störungen, so daß die Widerstandsthermometer aufgeheizt werden und nicht mehr benutzbar sind. Um das Platin-NMR-Thermometer dennoch an den Widerstandsthermometern zu kalibrieren, wurde zu folgender Methode gegriffen: Bei ausgeschaltetem PLM 4 wird mit einem festen Heizstrom die Mischkammer geheizt und dabei solange gewartet, bis sich ein Gleichgewicht eingestellt hat. Dann wird über einen längeren Zeitraum der Wert der Widerstandsmeßbrücke gemittelt. Anschließend wird das PLM 4 eingeschaltet und der Meßwert des Platin-NMR-Thermometers gemittelt. Dieses Verfahren wurde bei einigen Temperaturen wiederholt. Aus diesen Werten und mit Hilfe des am Sprungpunkt des supraleitenden Fixpunktes (siehe Abschnitt 4.2.4) erhaltenen Amplitudenwerts kann das Platin-NMR-Thermometer kalibriert werden. Eine typische Kalibration zeigt Bild 4.8.

¹²TOE 8851-64 von Toellner GmbH, dieses bietet folgende Leistungsdaten: Temperaturkoeffizient 10^{-4} K^{-1} , Restwelligkeit $0.2 \text{ mA}_{\text{eff}}$, Stabilität über 8 Stunden 0.1 %.

Sprungtemperatur	15.4	mK
kritisches Feld	0.12	mT
Reinheit der Probe	99.99	%
Orientierung des Kristalls	(110)	
Meßfrequenz	11.9	Hz

Tabelle 4.5: Daten des Wolfram-Fixpunkt-Thermometers. Der Wert des kritischen Feldes ist [Pob96] entnommen.

4.2.4 Wolfram-Fixpunkt-Thermometer

Der supraleitende Übergang reiner Supraleiter wird schon seit längerem als Temperatur-Fixpunkt benutzt [Sch82, Pob96]. Für den Millikelvin-Bereich bietet sich das Material Wolfram an, das eine Sprungtemperatur von 15.4 mK aufweist. Der Vorteil eines Fixpunkt-Thermometers ist das schnelle Ansprechen des Thermometers, sofern gute thermische Ankopplung gewährleistet ist, die relativ einfache Meßbarkeit und die Tatsache, daß das Thermometer nicht kalibriert werden muß.

Bei der Sprungpunkt-Thermometrie wird der *Meißner-Effekt* ausgenutzt. Die Probe befindet sich in der Primärspule einer Gegeninduktivitätsmeßbrücke. Die Primärspule erzeugt ein schwaches Magnetfeld am Ort der Probe. Sobald die Probe supraleitend ist, wird dieses Magnetfeld aus der Probe verdrängt. Dadurch ändert sich die Gegeninduktivität der Sekundärspule.

Durch den Einsatz hochreiner Metalle ist allerdings die meßbare Änderung klein. Je besser die Leitfähigkeit eines Materials ist, desto geringer ist die Eindringtiefe eines magnetischen Wechselfeldes mit der Kreisfrequenz ω . Die sog. *Skintiefe* ist gegeben durch:

$$\lambda_S = \sqrt{\frac{\rho_s}{\pi\mu_0\mu\omega}}, \quad (4.5)$$

mit dem spezifischen Widerstand ρ_s und der Permeabilität μ des Materials.

Im supraleitenden Zustand dringt das Magnetfeld ebenfalls in die Probe ein, die Tiefe ist als *Londonsche Eindringtiefe* bekannt:

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m_e}{\mu_0 n_s e^2}}, \quad (4.6)$$

mit der Elektronenmasse m_e und -ladung e und der Dichte der supraleitenden Ladungsträger n_s . Je besser die Leitfähigkeit und damit je höher die Reinheit des Materials ist, desto weniger unterscheiden sich die Gegeninduktivitätswerte im normal- und supraleitendem Zustand.

Bei dem an der MKA 3 benutzten Aufbau befindet sich ein Wolfram-Einkristall¹³ in einem speziellen Probenhalter. Auf den Kristall ist die Primärspule aus Nb/Ti-in-Cu/Ni

¹³Goodfellow GmbH, Bad Nauheim.

Multifilament-Supraleiter¹⁴ gewickelt, darauf die Sekundärspule aus Kupferdraht einer Stärke von $50\ \mu\text{m}$. Weitere Daten des Aufbaus sind in Tabelle 4.5 zusammengefaßt. Um eine „Unterkühlung“ des Supraleiters zu verhindern, sind auf der Stirnfläche Metallpunkte aus Aluminium ($T_c = 1.18\ \text{K}$) aufgeschweißt. Die Supraleitung im Aluminium breitet sich per *proximity-Effekt* auch in den Wolfram-Kristall aus, dadurch wird das Wolfram beim Unterschreiten seiner Sprungtemperatur sofort supraleitend.

Da die Sprungtemperatur von Wolfram extrem magnetfeldabhängig ist (Temperaturänderung durch ein Magnetfeld: $0.1\ \text{mK}/\mu\text{T}$ [Pob96, Hec01]), besitzt das Fixpunkt-Thermometer eine zylinderförmige, einseitig geschlossene Abschirmung aus Mumetall¹⁵. Dieses Material bietet bei einer Temperatur von $4\ \text{K}$ Permeabilitäten bis 70000 und Schirmfaktoren $S = H_{\text{außen}}/H_{\text{innen}}$ über 1000 [Vac75]. Allerdings läßt die Schirmwirkung bei größeren Feldern schnell nach, da das Material zunehmend in Sättigung gerät. Zur Abschirmung größerer Felder befindet sich deshalb eine supraleitende Schirmung aus Niobfolie ($T_c = 9.3\ \text{K}$) in der Mumetall-Abschirmung.

Die Messung der Gegeninduktivität wurde mit einer Meßbrücke vom Typ Linear Research LR700 vorgenommen. Dabei handelt es sich um eine automatische Wechselstrom-Widerstandsmeßbrücke, die auch im Gegeninduktivitäts-Modus betrieben werden kann. Das Signal wurde per Analogausgang auf eine PID-Regelung gegeben¹⁶, die den Heizstrom des Heizers auf dem Probenträger regelt. Mit dieser Regelung sollten Temperaturstabilitäten bis $1\ \mu\text{K}$ möglich sein [Hec01]. Diese konnten an der MKA 3 bisher allerdings nicht erreicht werden, da die thermische Ankopplung des Wolfram-Fixpunktthermometers und von Teilen des Probenträgers zu schlecht war. Zudem gab es Aufheizung und Instabilitäten durch über das ^4He -Rückgewinnungssystem eingebrachte Vibrationen.

4.3 Erzeugung des Magnetfelds

Messungen im Magnetfeld wurden an den Kryostaten MK 2 und MKA 3 der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, am resistiven Magneten M10 in Grenoble und an einem Kryostaten der Universität Karlsruhe durchgeführt. Da ein Teil der Aufgabenstellung der vorliegenden Arbeit Einbau und Inbetriebnahme des zweistufigen Magneten am MKA 3 war, folgt zu diesem Magnetsystem eine ausführlichere Beschreibung.

4.3.1 Zweistufiges Magnetsystem

Das am MKA 3 eingesetzte Magnetsystem wurde zum Zwecke des Aufbaus eines zweistufigen Kernentmagnetisierungskryostaten beschafft. Dazu besitzt das von der Firma Oxford¹⁷ gelieferte System zwei Magnete, die ein maximales Feld von jeweils $9\ \text{T}$ er-

¹⁴Vacyrflux 5001 FKN60/0.2, Fa. Vaccumschmelze GmbH, Hanau.

¹⁵Cryoperm[®], Vacuumschmelze GmbH, Hanau.

¹⁶TS530, Picowatt rv-elektronikka oy, Vantaa, Finnland.

¹⁷Oxford Instruments, Scientific Research Division, Witney, England.

zeugen können. Der obere Magnet bietet zur Aufnahme einer ursprünglich geplanten großvolumigen Kupfer-Kernentmagnetisierungsstufe eine weite Bohrung. Zum Betrieb der geplanten zweiten Platin-Kernentmagnetisierungsstufe oder von Experimenten ist der untere Magnet auf höchste Homogenität optimiert. In Tabelle 4.6 sind die wichtigsten Parameter der beiden Magnete zusammengestellt.

Da der zum Betrieb einer Entmagnetisierungsstufe benötigte Wärmeschalter und Tieftemperatur-Thermometer äußerst sensitiv auf Magnetfelder reagieren, ist das Magnetfeld oberhalb des oberen Magneten und zwischen den beiden Magneten auf unter 10 mT kompensiert.¹⁸ In Bild 4.9 sind die mit einer Hallsonde gemessenen axialen und radialen Magnetfeldanteile aufgetragen, wenn der obere Magnet auf 8 T aufmagnetisiert ist. Das Restfeld in den kompensierten Bereichen zeigt eine starke Abhängigkeit vom Meßort. Im unteren kompensierten Bereich (im Bild rechts schattiert eingezeichnet) wird die Spezifikation nicht eingehalten. Weiterhin ist das Magnetfeld unterhalb des Magnet-systems auf unter 100 mT kompensiert, um das Aufmagnetisieren der Armierungen im Boden zu minimieren.

Um die Stabilität des Magnetfeldes zu erhöhen, wurde der Magnet durchweg im *persistenten Modus* betrieben. Dazu ist die supraleitende Magnetwicklung im flüssigen Helium mit einer supraleitenden Verbindung kurzgeschlossen. Diese Verbindung kann mit einem Heizer normalleitend geschaltet werden. Jetzt kann durch Erhöhen bzw. Erniedrigen des Stroms mit Hilfe des Netzteils das Magnetfeld auf- bzw. entmagnetisiert werden. Nach Abschalten des Heizers und kurzer Wartezeit ist der Magnet supraleitend kurzgeschlossen und damit ein persistenter Kreisstrom im Magneten eingeschlossen. Nun kann die äußere Stromversorgung abgeschaltet werden. Das selbstgeschriebene Meßprogramm (siehe Abschnitt 4.4.2) ist in der Lage, diese Schritte automatisch durchzuführen.

Neben der erwähnten höheren Stabilität des Magnetfeldes hat diese Vorgehensweise noch zwei weitere Vorteile. Einerseits fließt in den Zuleitungen des Magneten außer während der Phasen des Auf- bzw. Entmagnetisierens kein Strom, was die Ohmschen Verluste und damit den Verbrauch an flüssigem Helium senkt. Andererseits erzeugen die Netzteile im Betrieb hochfrequente elektrische Störungen, deren Größenordnung vom erzeugten Strom abhängt. Dies heizt die Widerstandsthermometer auf und würde eine Thermometrie bei tiefen Temperaturen unmöglich machen. Im gewählten persistenten Betrieb hingegen sind während der Meßphasen die durch das Netzteil erzeugten Störungen gering und gleichbleibend.

4.3.2 Magnetnetzteile

Zur Stromversorgung der Magnete kommen zwei Magnetnetzteile vom Typ PS120-10HS der Firma Oxford zum Einsatz. Dieser Typ verfügt über einen wassergekühlten Shunt und ist somit hochstabil¹⁹. Über RS232-Schnittstellen können die Netzgeräte voll fernbe-

¹⁸Zum Vergleich: Die Vertikalkomponente des Erdmagnetfeldes ist rund 0.05 mT.

¹⁹Stabilität: 3 mA/h, Restwelligkeit: 0.2 %.

Magnet		oberer	unterer
Maximales Magnetfeld bei 4.2 K	(T)	9.0	9.0
benötigter Strom für Maximalfeld	(A)	91.3	89.1
Homogenität des Feldes in 10 mm Kugelvolumen	(ppm)	<1000	7.3
Durchmesser der Bohrung	(mm)	160	84
Abstand des Feldzentrums vom Montageflansch	(mm)	575	1200

Tabelle 4.6: Parameter der beiden Magnete des zweistufigen Magnetsystems am MKA 3.

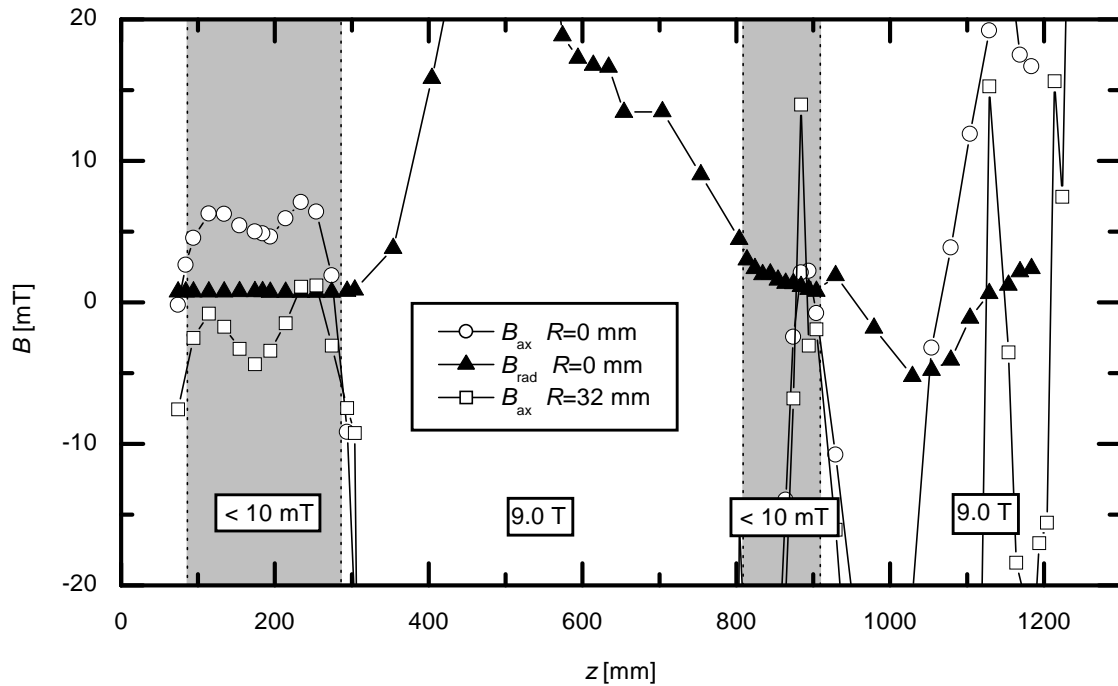


Bild 4.9: Kompensation des zweistufigen Oxford-Magnetsystems. Aufgetragen sind die Magnetfelder in axialer Richtung im Zentrum (\circ) und 32 mm außerhalb des Zentrums (\square) des Magneten sowie der Radialanteil des Magnetfeldes im Zentrum (\blacktriangle), wenn der obere Magnet auf -8 T aufmagnetisiert und im persistenten Betrieb ist. Den Nullpunkt der z -Achse stellt der obere Montageflansch des Magnetsystems dar. Die zwei kompensierten Bereiche des Magnetsystems sind schattiert angedeutet, ebenso sind die Feldmittelpunkte der beiden Magnete durch ein Textfeld mit dem Wert des Maximalfeldes gekennzeichnet [Eng99].

dient werden, die zugehörigen Leitungen wurden über Optowandler und Lichtwellenleiter durch die HF-geschirmte Kabine nach außen geführt.

Die minimale Einstellbarkeit des Stroms beträgt 0.01 A, dies begrenzt die minimale Flußdichte auf 1 mT. Aufgrund des digitalen Aufbaus des Netzteils wird der Strom beim Rampen des Magnetfelds nicht kontinuierlich, sondern stufenförmig geändert. Da diese schnellen Änderungen des Magnetfeldes eine erhöhte Wirbelstromheizung im Kryostaten verursachten, wurde zur Glättung des Stroms ein Kondensator (Kapazität: 33 mF) parallel zum Netzteil am Magneten angeschlossen.

4.3.3 Hochfeldmagnetlabor Grenoble

Um die Magnetfeldmessungen zu höheren Feldern zu erweitern, wurde Meßzeit am Hochfeldmagnetlabor in Grenoble beantragt. Das GHMFL (Grenoble High Magnetic Field Laboratory) wird gemeinsam vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart und dem CNRS betrieben [Gre00]. Dort kam der leistungsfähigste resisitive Magnet M10 zum Einsatz. Die wichtigsten Leistungsdaten dieses Magneten sind in Tabelle 4.7 aufgelistet.

Tiefe Temperaturen wurden mit Hilfe eines speziellen, in die 50 mm-Bohrung des Magneten eingepaßten Kryostaten erzeugt. Leider war die tiefste erreichbare Temperatur auf rund 60 mK begrenzt. Die Mischkammer ist zur Minimierung der Wirbelstromheizung aus Epoxidharz konstruiert, deshalb ist es zur Thermalisierung der Proben erforderlich, diese direkt in der Mischkammer zu montieren.

4.4 Datenerfassung

Die Daten der Experimente und die Betriebsdaten des Gashandlingsystems werden über verschiedene Systeme erfaßt (siehe Bild 4.10). Dabei stellen insbesondere die in der Kabine anfallenden Daten eine besondere Herausforderung dar. Um die Schirmwirkung der HF-geschirmten Kabine nicht zu beeinträchtigen, müssten sämtliche Meßleitungen

Maximale Flußdichte	28	T
Homogenität des Feldes in 10 mm Kugelvol.	1400	ppm
Durchmesser der Bohrung	50	mm
Strom für Maximalfeld	40	kA
Maximale Leistung	20	MW
Maximaler Kühlwasserdurchfluß	1000	m ³ /h
Maximaler Kühlwasserdruck	200	kbar

Tabelle 4.7: Leistungsdaten des Magneten M10 am Hochfeldmagnetlabor Grenoble [Gre00].

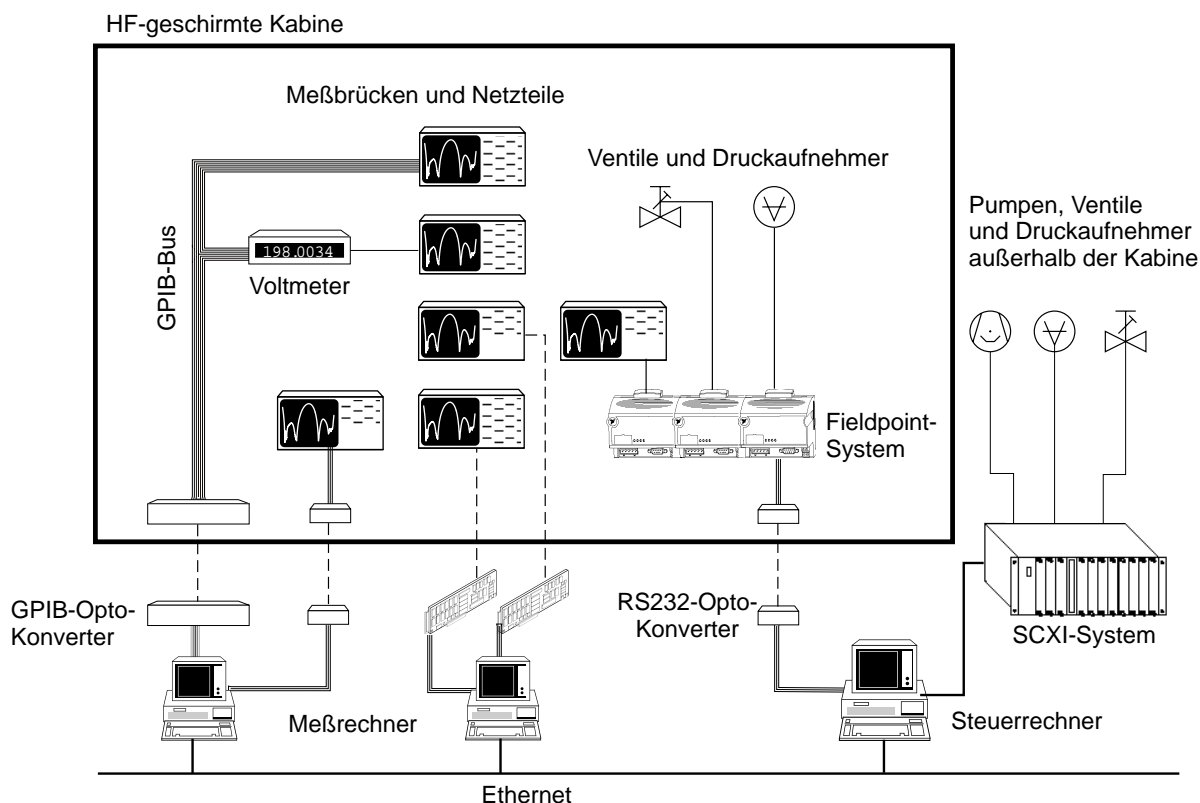


Bild 4.10: Schema der Datenerfassung an der MKA 3. Zur Erläuterung siehe Text.

sorgfältig gefiltert werden. Weniger aufwendig hingegen ist die an der MKA 3 eingesetzte Methode, alle Signale mittels Lichtleitern aus der Kabine zu übertragen.

4.4.1 Gashandlingssystem

Der Steuerrechner des Gashandlingssystems nimmt Daten außerhalb der Kabine über ein SCXI-System der Firma National Instruments auf. Dabei handelt es sich um eine Busarchitektur, mit der über verschiedene Einschubkarten Analog- und Digitaldaten erfaßt und Relais geschaltet werden können. Die Steuerung erfolgt über eine ISA-Karte in einem PC.

Betriebsdaten, die innerhalb der HF-Kabine anfallen, werden in der Kabine in Digitalinformationen gewandelt. Dazu dient ein Bussystem zur verteilten Datenerfassung des Typs Fieldpoint der Firma National Instruments. Die Daten können mittels einer RS232-Schnittstelle über Optostrecken durch die Kabine gegeben und ebenfalls auf dem Steuerrechner des Gashandlingssystems angezeigt werden. Dieser Steuerrechner stellt zudem die wichtigsten Betriebsdaten (^3He -Durchfluß, Verdampferdruck, Heliumstand, etc.) per TCP/IP-Protokoll anderen Rechnern im Netzwerk zur Verfügung. Dadurch können diese Informationen zeitsynchron mit den Abläufen der Experimente verknüpft werden.

Das Programm zur Steuerung des Gashandlingssystems wurde in LabView²⁰ erstellt. Neben der Anzeige aller Betriebsdaten und der Steuerungsmöglichkeit der Pneumatikventile und Pumpen wurden auch mehrere Sicherheitsroutinen integriert. Diese können folgende kritischen Zustände abfangen:

- Bei der Verstopfung der aktiven Stickstoffkühlfalle (NKF) des ³He-Kreislaufes (siehe Tabelle 4.2) wird automatisch auf eine parallelgeschaltete zweite Kühlfalle umgeschaltet.
- Bei Kühlwasserausfall werden die entsprechenden Pumpen ausgeschaltet, um eine Beschädigung zu verhindern.
- Bei Überdruck am Verdampfer werden die Pumpen ausgeschaltet und die Ventile vor dem Pumpen geschlossen.
- Bei Ausfall einer Vorpumpe wird die entsprechende Hauptpumpe ausgeschaltet und die Ventile zum Rezipienten geschlossen.
- Bei Bruch der Kühlwasserleitung wird das Kühlwasserventil geschlossen.

4.4.2 Meßdatenerfassung

Die Meßdaten der Experimente fallen in der HF-geschirmten Kabine (siehe Kapitel 4.1.2.4) an, die zur Datenerfassung eingesetzten Rechner müssen aber außerhalb der Kabine stehen. Deshalb werden die Daten auf optischem Weg aus der Kabine übertragen. Dies verhindert einerseits hochfrequente Einstrahlungen über Kabel, andererseits vermeidet man somit wirkungsvoll Masseprobleme. Ein Teil der Meßgeräte verfügt über GPIB-Schnittstellen, diese werden per Bus verbunden und mit Hilfe eines GPIB-Opto-Wandlers auf Glasfaserleitungen gegeben. Außerhalb der Kabine werden die Lichtsignale wieder rückgewandelt und von einem Rechner mit GPIB-Karte erfaßt.

Meßgeräte, die nicht über einen GPIB-Anschluß verfügen, werden mittels serieller Schnittstelle ausgelesen oder per Analogausgang auf ein Voltmeter gegeben. Die seriellen Verbindungen werden einzeln mittels Optoleitungen durch die Kabinenwand geleitet. Dort sind Mikrocontroller vorhanden, welche die Daten entgegennehmen und auch die Meßgeräte steuern können. Die Mikrocontroller wiederum werden über einen Rechner mit achtfacher serieller Schnittstelle ausgelesen.

Auf beiden Rechnern läuft ein unter LabView selbstgeschriebenes Programm, dessen Stärke darin liegt, alle Meßdaten zeitsynchron zu erfassen. Die Daten werden über einen Zeitraum von einer Minute gemittelt und in Dateien geschrieben.

4.5 Messung der dielektrischen Funktion

Bei der im Experiment eingesetzten Meßbrücke²¹ handelt es sich um eine hochgenaue automatische Kapazitätsmeßbrücke mit eingebautem Referenzkondensator. Bild 4.5 zeigt

²⁰LabVIEW 5.0.1, von National Instruments, Austin, Texas, USA, <http://www.ni.com>.

²¹AH2500A, Andeen-Hagerling, Inc., Cleveland, Ohio, U.S.A.

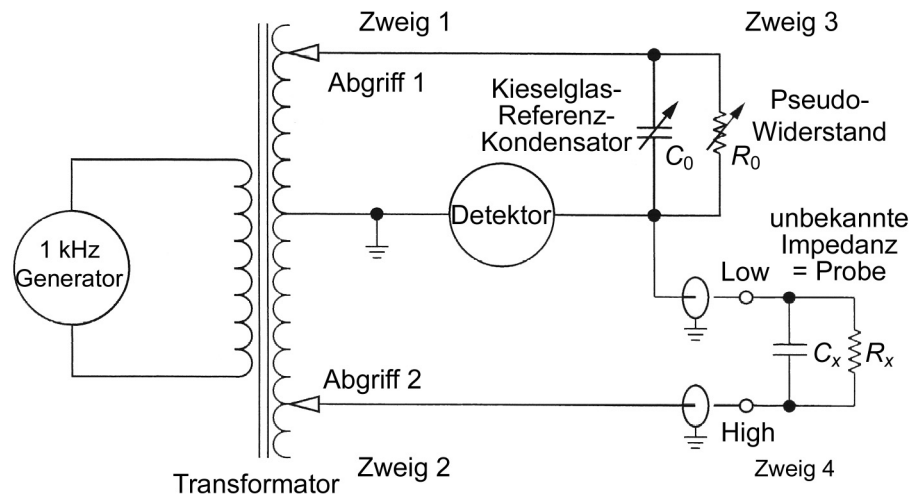


Bild 4.11: Blockschaltbild der Andeen-Hagerling AH2500-Meßbrücke. Eine nähere Beschreibung ist im Text gegeben. Nach [And94].

das Blockschaltbild der Brücke. Die sinusoidale Anregungsspannung mit einer Frequenz von 1 kHz wird über einen Transformator mit einstellbaren Abgriffen den Zweigen 1 und 2 der Brückenschaltung zugeführt. Zweig 3 enthält die einstellbare Referenzimpedanz und Brückenzweig 4 enthält die unbekannte Impedanz. Die Referenzimpedanz besteht aus einem von drei Kieselglas-Referenzkondensatoren, die in einem kleinen Ofen auf konstanter Temperatur gehalten werden und einer Schaltung, die einen hochgenauen Widerstand simuliert.

Um die Kapazität zu bestimmen, variiert die mikroprozessorgesteuerte Brückenschaltung die Abgriffe 1 und 2 und die Referenzimpedanz C_0 und R_0 solange, bis der Nulldetektor minimalen Stromfluß registriert. Da der Detektor phasengleiche und gegenphasige Komponenten trennen kann, können Kapazität und Verlustwinkel getrennt bestimmt werden:

$$\frac{C_x}{C_0} = \frac{V_1}{V_2} \quad , \quad \frac{R_x}{R_0} = \frac{V_2}{V_1} \quad , \quad (4.7)$$

mit den Spannungen V_1 bzw. V_2 an den Abgriffen 1 bzw. 2. Der Verlustwinkel $\tan \delta$ wird aus Konduktanz $G = 1/R_x$ und kapazitiver Suszeptanz berechnet:

$$\tan \delta = \frac{G}{\omega C_x} \quad . \quad (4.8)$$

Beim Anschließen der Meßleitungen muß darauf geachtet werden, daß die Schirmung der Leitungen und der Probe vollständig ist, um parasitäre Kapazitäten zu minimieren. Weitere Parameter der Brücke sind in Tabelle 4.8 angegeben.

Die Brücke bietet weiterhin die Möglichkeit, zusätzlich eine Bias-Gleichspannung auf die Probe zu geben. Diese wird allerdings über einen Reihenwiderstand von mindestens

Meßfrequenz	1	kHz
Frequenzgenauigkeit	0.005	%
Auflösungsvermögen Kapazität	0.7	aF
Auflösungsvermögen Verlustwinkel	0.15	ppm
Temperaturkoeffizient	0.03	ppm/°C
Stabilität	< 1	ppm/Jahr
minimale Meßspannung	0.003	V
maximale Meßspannung	15	V

Tabelle 4.8: Parameter der Andeen-Hagerling AH2500-Meßbrücke [And94].

1 M Ω geleitet, so daß man entsprechende Zeitkonstanten bei Spannungsänderungen beachten muß. Die Spannung wurde von einer Konstantspannungsquelle Digistant 6705 der Firma Burster erzeugt. Sowohl die Andeen-Hagerling-Brücke als auch die Spannungsquelle sind vollständig über GPIB fernsteuerbar.

4.6 Proben

Die in dieser Arbeit untersuchten Gläser, BK7 und BaO-Al₂O₃-SiO₂ sind Mehrkomponentensysteme. Tabelle 4.10 zeigt die chemische Zusammensetzung, die mit der im Abschnitt 4.6.1 beschriebenen Analyse erhalten wurde.

BK7 ist der Handelsname eines für optische Zwecke entwickelten Borosilicatglases der Firma Schott [Sch96]. Kennzeichnend für die Zusammensetzung dieses Glastyps sind neben den Netzwerkbildnern Kieselsäure und Borsäure ein hoher Anteil Alkaliionen. Diese fungieren als Netzwerkwandler, die das Netzwerk aufbrechen. Dadurch wird die Substanz weicher und die hohe Schmelztemperatur von reinem SiO₂ reduziert. Die Zugabe von B₂O₃ erniedrigt den Wärmeausdehnungskoeffizienten und erhöht die Festigkeit. Die Struktur der Mehrkomponentengläser ist jedoch weitgehend unbekannt [Zar91].

Die optischen Eigenschaften von Gläsern werden über die Brechzahlen bei drei verschiedenen Wellenlängen und die Abbesche Zahl ν_e definiert. Gläser mit kleiner Brechzahl und $\nu_e > 55$ nennt man *Krongläser*, im Gegensatz zu *Flintgläsern*, die höhere Brechzahlen und $\nu_e < 50$ aufweisen. Bei BK7 handelt es sich – wie schon im Namen ersichtlich – um ein Kronglas. Wenn mit den Daten älterer Messungen verglichen wird, muß jedoch beachtet werden, daß Schott inzwischen den Herstellungsprozeß von BK7 verändert hat. Das Läutermittel²² Arsen wurde durch das weniger giftige Antimon ersetzt [Sch00]. Durch diese Veränderung könnten sich auch einige der physikalischen Eigenschaften von

²²Die Läuterung ist ein Prozeßschritt in der Glasherstellung. Durch Erhöhung der Temperatur der Schmelze zersetzt sich das zugegebene Läutermittel und es bilden sich große Blasen. Diese können bei ihrem Aufstieg zur Oberfläche kleinere Blasen mitreißen und die Schmelze weitgehend blasenfrei machen [Spa74].

Parameter	Einheit	BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	BK7	Duran
ρ	kg/m ³	3080 ^e	2510 ^f	2308 ^c
T_g	°C	850 ⁱ	557 ^f	530 ^h
$\overline{P}p_0^2$	10 ⁻¹³ C J ⁻¹ m ⁻²	0.91 ^g	1.28 ^d	
ϵ_r	—	7.0 ^d	5.6 ^d	4.8 ^d
v_l	m s ⁻¹		6000 ^a	5647 ^b
v_t	m s ⁻¹		3800 ^a	3457 ^b
γ_l	eV		0.87 ^a	
γ_t	eV		0.64 ^a	

Tabelle 4.9: Parameter für BaO-Al₂O₃-SiO₂-Glas, BK7 und Duran. Hierbei bedeuten: ρ : Dichte, T_g : Glasübergangstemperatur (siehe Fußnote auf Seite 54), v_l, v_t : longitudinale bzw. transversale Schallgeschwindigkeit, γ_l, γ_t : Kopplungskonstanten für longitudinale bzw. transversale Phononen. Der Parameter $\overline{P}p_0^2$ ist nach Gleichung (3.101) bestimmt. Die Permittivitätszahl ϵ_r wurde aus dem Absolutwert der Kapazität der eingesetzten Proben bei einer Frequenz von 1 kHz und Raumtemperatur bestimmt. Die Angaben wurden folgenden Arbeiten entnommen: *a* [Hun76a], *b* [Sch58], *c* [Her00a], *d* diese Arbeit, *e* [Sie01], *f* [Sch96], *g* [Ket99], *h* [Sch81] und *i* [Str01a].

BK7 verändert haben. Zur Unterscheidung bezeichnet Schott das arsenfreie Glas als „N-BK7“.

Das Bariumalumosilikatglas besteht aus einer eutektischen Zusammensetzung des Systems BaO, Al₂O₃ und SiO₂. Da die Herstellung dieses hochschmelzenden Glases aus der Schmelze mit großen technischen Schwierigkeiten verbunden ist [Lin70], wurden die in dieser Arbeit verwendeten Proben [Str88, Str92] im Sol-Gel-Prozeß hergestellt. Bei diesem Verfahren werden die in Ethanol gelösten metallorganischen Precursor hydrolysiert und durch die netzwerkbildenden Kationen Si⁴⁺ und Al³⁺ zu einem Gel kondensiert. Durch Einstellen des pH-Werts wird die Struktur der Polymere kontrolliert. Nach Trocknen und Ausheizen der restlichen Organika wird ein Pulver erhalten, das zu einer Siebdruckpaste verarbeitet werden kann. Diese Paste kann mit herkömmlichen Dickfilmverfahren aufgebracht werden und wird anschließend bei 900 °C getempert.

Bei Modellierungen nach dem Tunnelmodell gehen verschiedene physikalische Parameter der Gläser in die Rechnung ein. In Tabelle 4.9 sind die erhältlichen Parameter für die in dieser Arbeit untersuchten Gläser zusammengestellt.

4.6.1 Probenanalyse

Um die genaue Zusammensetzung der verwendeten Proben zu bestimmen, wurde eine chemische Analyse durch das ISC²³ durchgeführt. Dort wurden die Proben gemahlen, mit Flußsäure-Perchlorsäure aufgeschlossen und mittels ICP-AES-Spektroskopie analysiert. Bei der *Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy* wird die Probe

²³Fraunhofer-Institut für Silikatforschung ISC, Würzburg, <http://www.isc.fhg.de/>.

Elementoxid	Molmasse (g/mol)	BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂		BK7		Duran	
		Gew.-%	Mol-%	Gew.-%	Mol-%	Gew.-%	Mol-%
SiO ₂	60.084	52.4	72.7	70.2	74.8	80.2	83.4
B ₂ O ₃	69.620	0.6	0.72	10.4	9.6	12.9	11.6
Al ₂ O ₃	101.961	10.6	8.7	0.04	0.028	1.85	1.14
Na ₂ O	61.979	0.21	0.28	9.74	10.1	3.35	3.4
K ₂ O	94.196	0.072	0.064	6.98	4.7	0.61	0.41
BaO	153.326	31.3	17.0	1.8	0.76	0.013	0.005
Li ₂ O	29.881	0.005	0.014	0.001	0.002	0.002	0.004
PbO	223.199	1.28	0.48	< 0.02	< 0.01	< 0.02	< 0.01
Fe ₂ O ₃	159.690	51±1 ppm		3±1 ppm		63±1 ppm	
Fe ³⁺		102±2 ppm		6±2 ppm		126±2 ppm	

Tabelle 4.10: ICP-AES Analyse der untersuchten Gläser. Die Zusammensetzung der Gläser ist einerseits in Massenanteilen, andererseits in der Teilchenzusammensetzung der Oxide angegeben. Zum Vergleich ist die aus Messungen der Gleichfeld-Suszeptibilität erhaltene Eisenkonzentration angegeben.

in gesäuerter wässriger Lösung mit Hilfe eines Argongasstromes in ein Plasma gebracht. Bei Temperaturen von 6000 K bis 8000 K werden die Bestandteile verdampft und ionisiert. Die bei der Rekombination emittierten Spektrallinien werden mit Referenzspektren verglichen und erlauben eine quantitative Analyse.

Tabelle 4.10 zeigt die Analyseergebnisse der untersuchten Gläser. Zusätzlich ist noch die Fe³⁺-Konzentration angegeben, die in der Arbeit von Siebert [Sie01] aus Messungen der Gleichfeld-Suszeptibilität [Her00a, Her01] erhalten wurden.

4.6.2 Probenpräparation

4.6.2.1 BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensor

Die BaO-Al₂O₃-SiO₂-Glasprobe wurde ausschließlich in Form eines von W. C. Heraeus GmbH in Dickfilm-Technik hergestellten Kondensators untersucht. Bild 4.12 zeigt eine schematische Schnittzeichnung durch einen Dickfilmsensor. Auf einem Saphirsubstrat sind übereinander in Siebdrucktechnik Bodenelektrode, Glasschicht (10x10mm², Dicke: 50 μm) und Deckelektrode aufgebracht. Um metallischen thermischen Kontakt zum Probenhalter herzustellen, ist auf der Unterseite des Saphirsubstrats eine weitere Goldschicht aufgebracht. Zur elektrischen Kontaktierung befinden sich zwei Anschlußflächen auf dem Substrat. Alle Goldschichten bestehen aus der Goldpaste C 5754 B, die Glasschicht aus im Sol-Gel-Prozeß hergestelltem BaO-Al₂O₃-SiO₂-Gaspulver, das zu einer Dickfilmpaste verarbeitet wurde.

Bei Messungen an den Kryostaten der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt wurde der Dickfilmsensor zur besseren elektrischen Schirmung und thermischen Ankopp-

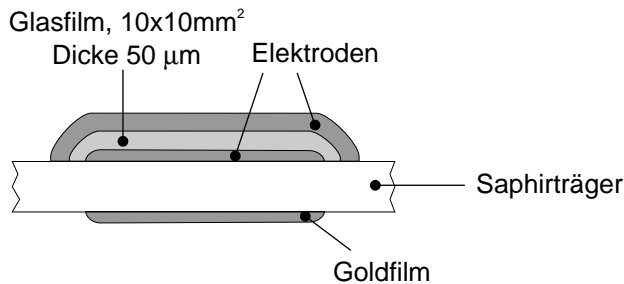


Bild 4.12: Schnittzeichnung durch den BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensor.

lung in einem Kupfergehäuse gekapselt. Dieses besteht aus getempertem, vergoldetem OFHC-Kupfer²⁴ mit einem Restwiderstandsverhältnis von rund 1200 [Str92]. Halbstarre Miniatur-Koaxialleitungen mit Kupfer-Innenleiter und -Schirmung wurden direkt auf die Anschlußflächen gelötet und sind durch Bohrungen im Gehäuse nach außen geführt. Um die Thermalisierung zu verbessern, wird thermischer Kontakt auch durch den Deckel des Gehäuses hergestellt, die Deckelelektrode des Dickfilmsensors ist dazu mittels eines in Isolationslack²⁵ getränkten Zigarettenpapiers elektrisch isoliert.

4.6.2.2 BK7

Das Glas BK7 wurde in Scheibenform mit Durchmesser 15 mm und einer Dicke von 0.4 mm beidseitig poliert von der Firma Steeg & Reuter erworben²⁶. Die zur Kapazitätsmessung benötigten Elektroden wurden durch beidseitige Beschichtung mit rund 100 nm Gold realisiert. Das Aufbringen der Goldschichten erfolgte durch Sputtern in der institutseigenen Anlage. Eine genauere Beschreibung des Sputtervorgangs findet sich zum Beispiel in [Stu83]. Die im Kirchhoff-Institut für Physik verwendete Anlage ist in [Web91] beschrieben.

Beim Sputtern (oder Kathodenzerstäubung) wird ein elektrisches Feld angelegt, wobei die Kathode das *target* ist, welches aus dem aufzubringenden Material besteht. An der Anode ist das zu beschichtende Substrat befestigt. Es wird eine Gasentladung gezündet, so daß sich ein Plasma bildet. Positive Gasionen werden zur Kathode beschleunigt, wo sie mit hohen kinetischen Energien (einige eV) auftreffen. Dort schlagen sie Atome des Targetmaterials heraus, die sich dann auf dem Substrat absetzen.

Mit Hilfe geeigneter Sputterparameter gelang es, eine wischfeste Goldschicht *ohne* Haftvermittler (üblicherweise Chrom) aufzubringen. Da es bei akustischen Experimenten mit sog. *double-paddle*-Oszillatoren Probleme gab, die Glasproben über eine dünne Goldschicht abzukühlen [Lay00, Bur99], wurde zusätzlich eine Silberschicht der Dicke 1 µm aufgedampft. Die Silberbeschichtung wurde in der Aufdampfanlage des Kirchhoff-Institut für Physik vorgenommen.

²⁴OFHC: *oxygen free high conductivity*.

²⁵Mit Aceton verdünntes GE 7031 Varnish. Inzwischen unter der Bezeichnung IMI-7031 Varnish erhältlich bei [Lak99].

²⁶inzwischen Linos Photonics GmbH, Göttingen, <http://linos-photonics.de>

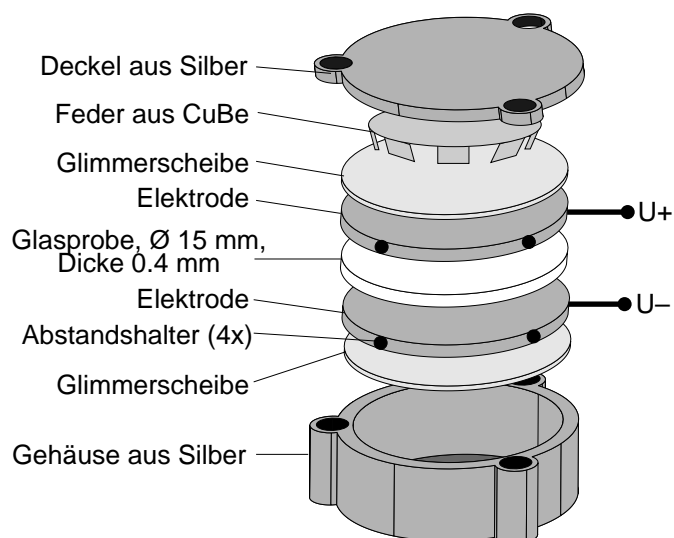


Bild 4.13: Explosionszeichnung des Probenhalter für Messungen an scheibenförmigen Glasproben. Zur Beschreibung siehe Text.

4.6.3 Probenhalter

Der Probenhalter zur Messung der BK7-Scheiben sollte neben möglichst kompaktem Aufbau eine gute thermische Ankopplung und vollständige Schirmung der Probe gewährleisten. Als Material wurde Silber einer Reinheit von 99.99% gewählt, da dieses Metall neben guter Wärmeleitung im Tieftemperaturbereich aufgrund seines Kernspins von $I=0$ im Magnetfeld keine Aufheizungs- bzw. Abkühleffekte durch Magnetisierung bzw. Entmagnetisierung der Kernspins zeigt.

Bild 4.13 zeigt den Aufbau des in der mechanischen Werkstatt der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt gefertigten Probenhalters. In der ausgefrästen Vertiefung des zylindrischen Gehäuses befindet sich zur elektrischen Isolation auf dem Boden eine dünne (ca. $50\ \mu\text{m}$) Scheibe aus Glimmer. Dieses Material, ein Schichtsilikat mit den Hauptbestandteilen SiO_2 , Al_2O_3 , und K_2O , besitzt eine hohe Wärmeleitfähigkeit und läßt sich aufgrund der Schichtstruktur in dünne Plättchen spalten. Die mit Gold/Silber-Elektroden versehene Glasprobe wird mit Hilfe zweier kreisförmiger, einseitig geläppter Silberscheiben (Dicke: 1 mm) kontaktiert. Auf den Mantelflächen dieser Scheiben sind Klebepunkte aus tieftemperaturtauglichem Epoxidharzkleber²⁷ aufgebracht, um einen Kurzschluß zum Gehäuse zu verhindern. In die der Glasprobe abgewandten Fläche der Silberscheibe ist in radialer Richtung eine kurze Vertiefung gefräst. Diese Vertiefung ist durch eine Sackbohrung in radialer Richtung verlängert. In diese Sackbohrung wurde der Innenleiter des verwendeten Koaxialkabels mit Silberleitpaste²⁸ geklebt.

Diese Art der Kontaktierung wurde statt des Lötens gewählt, um eine thermische Verformung der Silberscheibe zu vermeiden. Außerdem werden die bei niedrigen Temperaturen schmelzenden Lötzinne bei Temperaturen im Kelvinbereich supraleitend [Pob96] und haben somit im Tieftemperaturbereich eine sehr schlechte Wärmeleitung. Zur Zug-

²⁷Delta Bond 152 von Wakefield.

²⁸PC870007 G von W. C. Heraeus GmbH, [Her00b].

entlastung ist das Dielektrikum mit Delta Bond in der Vertiefung verklebt. Durch einen Schlitz im Gehäuse sind die Kabel beider Elektroden nach außen geführt. Das Abschirmgeflecht sowie der Schlitz des Gehäuses sind zwecks vollständiger Abschirmung mit Silberleitpaste verklebt. Mit Hilfe einer Feder aus CuBe-Folie kann durch Verschrauben des Deckels auch im Tieftemperaturbereich sicherer elektrischer Kontakt zwischen den aufgedampften Elektroden der Glasscheibe und den Silberscheiben gewährleistet werden.

Der Probenhalter wurde mit drei Messingschrauben plan auf einen Winkel aus Silberfolie von 2 mm Dicke aufgeschraubt. Dieser Winkel ist mit Hilfe von dünnen Silberfolien thermisch mit der Mischkammer kontaktiert. Das Material Silber wurde wiederum aus den oben genannten Gründen gewählt. Zur mechanischen Stabilisierung dienen zwei Gewindestangen aus Kupfer.

Im Tieftemperaturbereich ist es aufgrund des T^3 -Abfalls der phononischen Wärmeleitung erforderlich, die Probe auch über die elektrischen Zuleitungen zu thermalisieren. Um dies zu gewährleisten, wurde ein tieftemperaturtaugliches Koaxialkabel²⁹ mit Kupfer-Innenleiter und Kupfer-Abschirmung gewählt. Der Innenleiter der Zuleitungen ist auf dem Silberwinkel des Probenhalter und an der Mischkammer thermisch abgefangen. Die thermischen Abfangungen sind aus Silber (am Probenhalter) bzw. aus getempertem, vergoldetem OFHC-Kupfer (an der Mischkammer) gefertigten Gehäusen. Mittels zweier Bohrungen wird der Innenleiter des Koaxkabels in das Gehäuse geführt, während der Außenleiter mit dem Gehäuse verbunden wird, um die Abschirmung zu verbessern. Da bei der eingesetzten Meßfrequenz von 1000 Hz die Impedanz der Leitungen keine Auswirkung auf die Dämpfung des Signals hat, wurden die Innenleiter auf eine mit Kupfer beschichtete Mylar-Leiterbahn aufgelötet. Die Leiterbahn ist mit einer dünnen Schicht Delta Bond auf dem Boden des Gehäuses festgeklebt. Falls Messungen mit höheren Frequenzen geplant sind, kann die Mylarfolie durch ein Saphirplättchen ersetzt werden, auf den ein Streifenleiter mit passender Impedanz aufgebracht ist [Cla99]. Ein passend gefertigter Deckel schließt das Gehäuse hochfrequenzdicht ab.

Um die der Mischkammer zugeführte Wärmelast zu minimieren, sind zwischen thermischer Abfangung auf der Mischkammer und Vakuumflansch Koaxialleitungen mit supraleitendem Innenleiter und Abschirmung aus Cu/Ni-Geflecht³⁰ eingesetzt. Am Vakuumflansch sind wiederum thermische Abfangungen für den Innenleiter montiert, die aus Gründen der Flexibilität mit SMB-Koaxialverbindern versehen sind. Vom Vakuumflansch bis zum Raumtemperaturanschluß sind Koaxialleitungen mit Edelstahl-Innenleiter und -Außenleiter³¹ im Einsatz.

Mit dem beschriebenen Aufbau war es möglich, rauscharme Messungen der Kapazität und des Verlustwinkels von BK7- und Duranproben bis zu einer Temperatur von 8 mK durchzuführen. Eine nähere Beschreibung der Messungen ist in Abschnitt 5.2 im folgenden Kapitel gegeben.

²⁹Typ CC-SC von Lake Shore Cryotronics, Inc. [Lak99].

³⁰Typ NbTi core in Cu-Ni matrix, insulated, $\varnothing=0.1$ mm von GVL Cryoengineering – Dr. George V. Lecomte GmbH, Stolberg.

³¹Typ CC-SS von Lake Shore Cryotronics, Inc. [Lak99].

5 Dielektrische Untersuchungen im Nullfeld

Durch dielektrische Experimente im Nullfeld¹ soll die in Abschnitt 3.2 gegebene theoretische Beschreibung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften überprüft werden. Zusätzlich ist eine Untersuchung des dielektrischen Tieftemperaturverhaltens von BaO-Al₂O₃-SiO₂ notwendig, um auszuschließen, daß die gefundenen Magnetfeldeffekte durch eine Besonderheit des Glases, der Probenpräparation oder der thermischen Ankopplung hervorgerufen werden.

5.1 Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ im Nullfeld

Die Messungen am Mehrkomponentenglas BaO-Al₂O₃-SiO₂ wurden ausschließlich mit dem in Abschnitt 4.6.2.1 beschriebenen Dickfilm-Sensor durchgeführt. Dieser wurde, eingebaut im Kupfergehäuse, an den Kryostaten MK 2 und MKA 3 in der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt gemessen.

5.1.1 Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion

Bild 5.1 zeigt die relative Änderung der Kapazität und die Änderung des Verlustwinkels im Temperaturbereich von 15 mK bis Raumtemperatur. Das bei amorphen Festkörpern gefundene und in Abschnitt 3.2.4.1 beschriebene Verhalten der dielektrischen Eigenschaften ist qualitativ erkennbar. Von tiefen Temperaturen kommend fällt der Realteil logarithmisch ab, bedingt durch die Abnahme des resonanten Prozesses. Durch das Einsetzen der Einphononen-Relaxation durchläuft die Kapazität ein Minimum und steigt wieder logarithmisch an. Ab einer Temperatur von rund 2 K setzen Relaxationsprozesse höherer Ordnung, wie z. B. Mehrphononenprozesse und inkohärentes Tunneln [Neu94, Wür98] ein, die eine stärkere Temperaturabhängigkeit der Kapazität verursachen. Zusätzlich gewinnt zunehmend der Prozeß der thermischen Aktivierung an Bedeutung, der nach Bild 3.6 ab Temperaturen von rund 10 K relevant wird. Der Verlustwinkel steigt bedingt durch die Zunahme von Relaxationsprozessen zuerst an, um dann bei Temperaturen

¹Als „Messungen im Nullfeld“ werden im Folgenden immer Messungen bezeichnet, die ohne zusätzlich erzeugtes Magnetfeld durchgeführt wurden. Remanenzen im Magneten und Kryostaten und das – evtl. durch eine geschirmte Kabine abgeschwächte – Erdfeld (Vertikalkomponente ca. 0.05 mT) sind natürlich immer vorhanden.

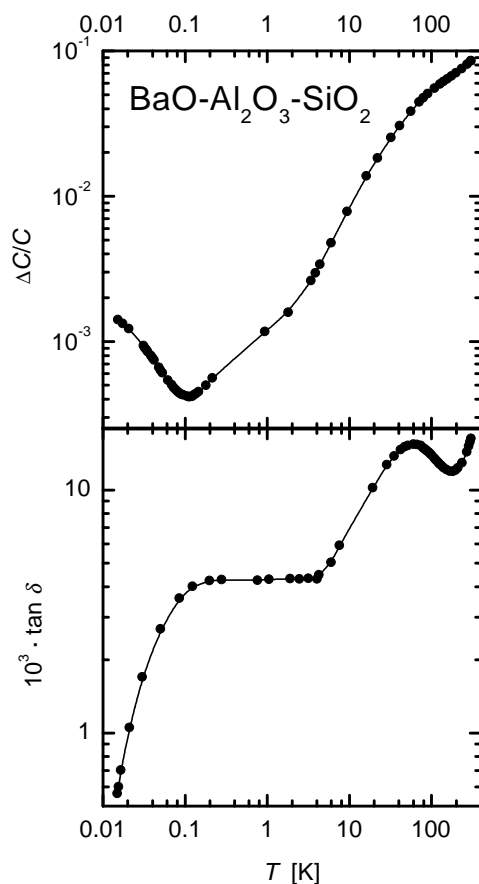


Bild 5.1: Relative Änderung der Kapazität $\Delta C/C = (C - C_0)/C$ mit $C_0 = 120$ pF und der Verlustwinkels eines BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensors bei Temperaturen von 15 mK bis Raumtemperatur. Die Anregungsspannung der Brücke war 750 mV. Im Gegensatz zu allen folgenden Darstellungen der dielektrischen Eigenschaften sind zur besseren Erkennbarkeit des Verhaltens über diesen großen Temperaturbereich die Ordinaten logarithmiert.

von ungefähr 200 mK in ein Plateau zu münden. Durch das Einsetzen von thermisch aktivierten Prozessen steigt der Verlustwinkel oberhalb einer Temperatur von ca. 10 K weiter an.

Zur genauen Betrachtung des Tieftemperaturverhaltens ist der Temperaturbereich unterhalb von 1 K in Bild 5.2 vergrößert für verschiedene Brücken-Anregungsspannungen aufgezeichnet. Zwei Abweichungen vom Standardtunnelmodell sind sofort erkennbar. Der Verlustwinkel bildet oberhalb einer Temperatur von 300 mK kein temperaturunabhängiges Plateau, sondern fällt – bei den Anregungsspannungen 1500 mV und 3000 mV – leicht ab. Nach der in Abschnitt 3.2 dargestellten Berechnung des Standardtunnelmodells in linearer Näherung ist keine Abhängigkeit des dielektrischen Verhaltens von der Anregungsspannung enthalten. Demgegenüber ist in Bild 5.2 deutlich ein Einfluß der Anregungsspannung erkennbar. Das Minimum der Kapazität verschiebt sich mit zunehmender Anregungsspannung zu höheren Temperaturen und das Abflachen der Kapazität im resonanten Bereich beginnt bei höheren Temperaturen. Zumindest die Abhängigkeit der Lage des Minimums von der Anregungsspannung läßt sich nur mit nichtlinearen Effekten deuten. Die Bedingung für eine lineare Beschreibung war in Abschnitt 3.2.2.4 gegeben durch: $p_0 \mathcal{E} \ll k_B T$. Wird das mittlere Dipolmoment grob mit einem Debye²

²1 Debye entspricht $3.336 \cdot 10^{-30}$ C m.

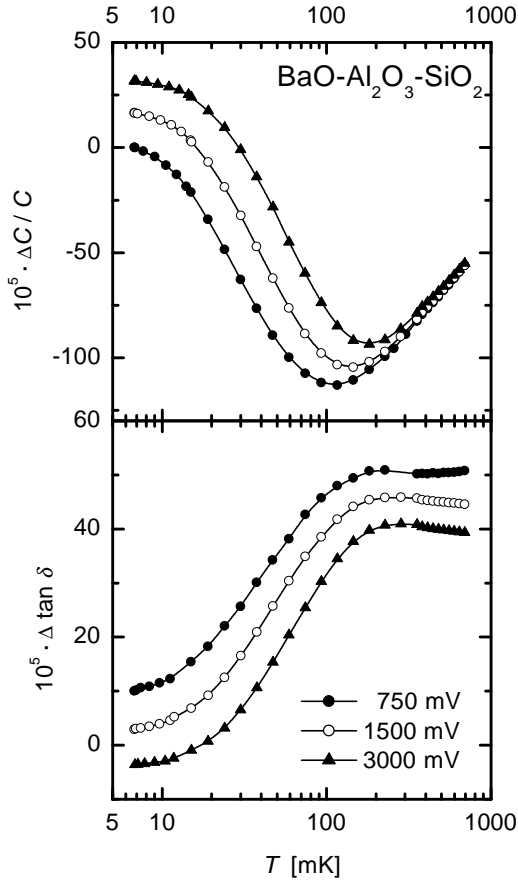


Bild 5.2: Relative Änderung der Kapazität und die Änderung des Verlustwinkels eines BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensors für drei verschiedene Anregungsspannungen. Die Änderungen der Kapazität sind auf den Meßwert bei der tiefsten Temperatur $T = 6.9$ mK und der Anregungsspannung 750 mV bezogen. Die Meßwerte des Verlustwinkels sind zur besseren Unterscheidung gegeneinander verschoben dargestellt.

abgeschätzt, dann ist die Bedingung für die den eingesetzten Anregungsspannungen entsprechenden Feldstärken von 15 kV/m bis 60 kV/m nicht erfüllt. Daraus folgt, daß die Anregungsspannung im nichtlinearen Bereich liegt.

Das Abknicken der Kapazität vom logarithmischen Verhalten bei tiefen Temperaturen könnte ebenfalls eine Folge von nichtlinearen Effekten sein. Möglicherweise handelt es sich aber auch um einen Überhitzungseffekt. Die dissipierte Leistungsdichte l eines verlustbehafteten Dielektrikums durch die Messung mit einem Meßfeld \mathcal{E} der Frequenz f ist gegeben durch [Frö49]:

$$l = \frac{1}{4} \epsilon_0 \epsilon_r \mathcal{E}^2 f \tan \delta, \quad (5.1)$$

Bei einem Plattenkondensator mit Plattenabstand d und Fläche A ist dann die dissipierte Leistung bei einer Anregungsspannung U_{exc} :

$$\dot{Q} = \frac{1}{4} C f U_{\text{exc}}^2 \tan \delta. \quad (5.2)$$

Bild 5.3 zeigt die nach (5.2) abgeschätzte dissipierte Leistung für den BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensor im Tieftemperaturbereich. Die Abführung von Leistungen von bis

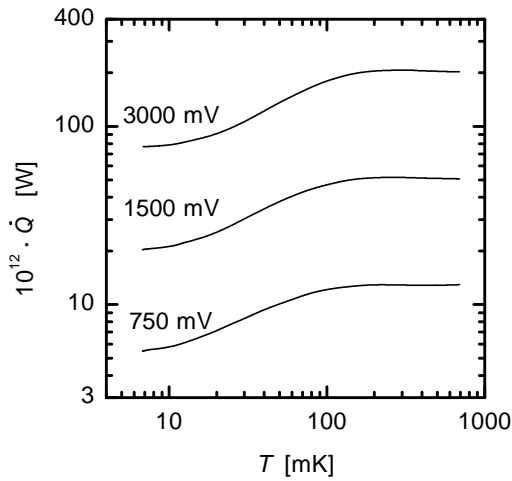


Bild 5.3: Abschätzung der dielektrischen Verlustleistung eines BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensors nach (5.2) für drei verschiedene Anregungsspannungen.

zu einigen 10^{-10} W könnte im Tieftemperaturbereich problematisch sein. Zur Abschätzung der Selbstheizung muß die Wärmeableitung durch die Anschlußdrähte berücksichtigt werden. Bedingt durch die schlechte Tieftemperatur-Wärmeleitfähigkeit des Isolators Saphir und die Wärmeübergangswiderstände (*Kapitza*-Widerstände) zwischen Glas, Goldelektrode, Saphirsubstrat, Goldschicht und vergoldetem Kupfergehäuse kann die Wärmeableitung über das Substrat vernachlässigt werden.

Mit der Wärmeleitfähigkeit von Kupferdraht $\kappa \approx 0.1 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$ bei 10 mK und einer Verlustleistung von 10^{-10} W kann eine untere Grenze für die Temperaturerhöhung mittels:

$$\dot{Q} = -\kappa A |\nabla T|, \quad (5.3)$$

auf rund 0.04 mK abgeschätzt werden. Bei den Experimenten wurde zudem durch wiederholtes Fahren von Temperaturstufen keine Hysterese gefunden. Dies und die Abschätzung der Selbstheizung geben Sicherheit, daß der Sensor nicht überhitzt war.

Rogge et al. [Rog97] konnten bei BK7 und Kieselglas ein Abflachen der Kapazität im Tieftemperaturbereich jedoch auch im linearen Bereich der Anregungsspannung beobachten. Die Temperatur des Abknickpunktes war unabhängig von der Anregungsspannung.

Leider existieren bisher keine Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ mit Anregungsspannungen, die im linearen Bereich liegen. Zur Diskussion des Unterschiedes von linearem und nichtlinearem Verhalten wird deshalb auf die Messungen an BK7 im Abschnitt 5.2 verwiesen.

5.1.2 Relaxation nach Anlegen eines konstanten elektrischen Feldes

Wird sprunghaft ein großes elektrisches Gleichfeld ($\mathcal{E}_{\text{DC}} \gg \mathcal{E}$) an die Probe angelegt, dann reagiert die Kapazität – wie in Abschnitt 3.2.5, Seite 39 beschrieben – auf diese Störung mit einem Sprung und anschließender logarithmischer Relaxation. Bild 5.4 zeigt

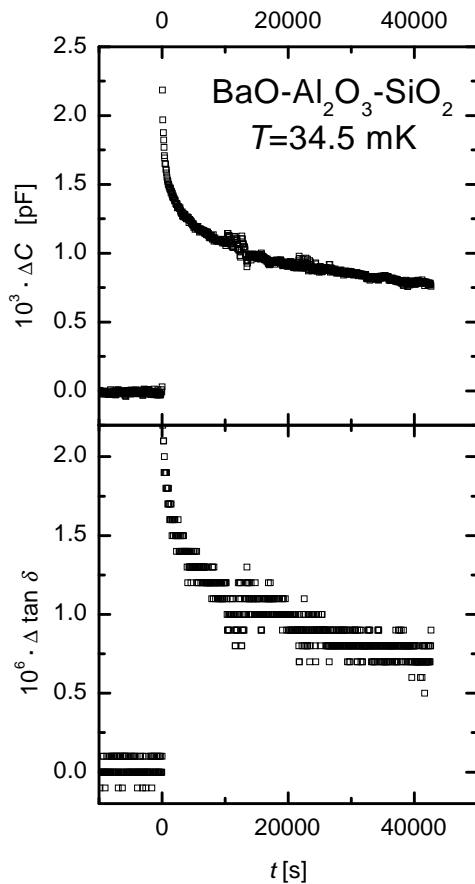


Bild 5.4: Zeitliche Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels nach dem sprunghaften Anlegen einer Gleichspannung von +10 V bei $t=0$ s. Die Anregungsspannung der Brücke betrug 750 mV und die Temperatur war 34.5 mK. Der Verlustwinkel zeigt Digitalisierungsartefakte, da die Änderungen im Bereich der Meßauflösung der Brücke sind.

die zeitliche Veränderung der Kapazität und des Verlustwinkels nach dem sprunghaften Anlegen eines elektrischen Gleichfeldes von $2 \cdot 10^5$ V/m. Der Sprung in der Kapazität bei $t=0$ s und die anschließende Relaxation ist deutlich erkennbar. Digitalisierungsartefakte zeigen, daß die Änderungen des Verlustwinkels im Bereich der Meßauflösung der Brücke liegen und deshalb im Folgenden nicht berücksichtigt werden.

Werden die Daten mit logarithmierter Abszisse aufgetragen (siehe Bild (5.5)), dann ist die logarithmische zeitliche Variation der Kapazität gut erkennbar. Die Meßdaten lassen sich mit einem temperaturabhängigem Parameter $\Delta C_0(T)$ und einem für alle Kurven identischen Parameter A nach folgender Funktion anpassen:

$$\Delta C(T) = \Delta C_0(T) (1 - A \ln t) . \quad (5.4)$$

Die Temperaturabhängigkeit des Fitparameters $\Delta C_0(T)$ ist in Bild 5.6 dargestellt. Zum Vergleich sind theoretisch berechneten Daten von Carruzzo et al. [Car94] mit eingezeichnet, allerdings wurden diese mit Parametern für Kieselglas (siehe Bildunterschrift zu Bild 3.8, Seite 40) berechnet. Qualitativ ist Übereinstimmung erkennbar, wenn auch bei $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ die Steigung der Relaxation zu tiefen Temperaturen schneller zunimmt.

Eine logarithmische zeitliche Relaxation der Kapazität nach Anlegen eines großen

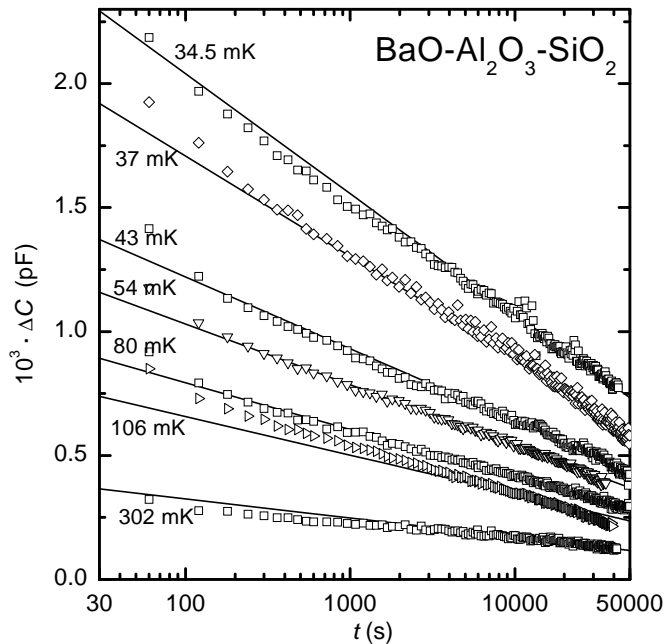


Bild 5.5: Zeitliche Änderung der Kapazität nach dem sprunghaften Anlegen einer Gleichspannung von +10 V für verschiedene Temperaturen bei einer Anregungsspannung von 750 mV. Die durchgezogenen Linien entsprechen einer Anpassung nach Gleichung (5.4) mit dem gemeinsamen Parameter $A = 0.07$. Die Temperaturabhängigkeit des Fitparameters $\Delta C_0(T)$ ist in Bild 5.6 aufgetragen.

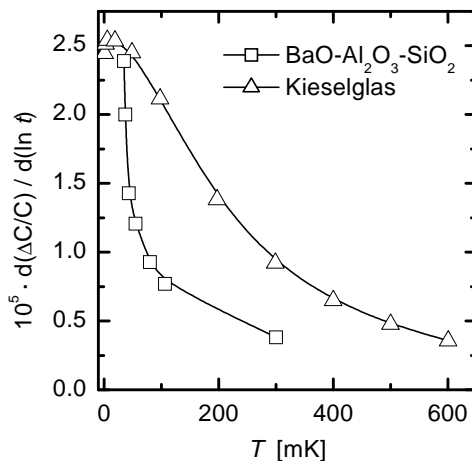


Bild 5.6: Steigung der logarithmischen Relaxation $\partial(\Delta C/C)/\partial \ln t = \Delta C_0(T)A/C$ nach der Anpassung (5.4), gemessen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ (□). Zum Vergleich sind berechnete Daten für SiO₂ nach [Car94] eingezeichnet (△).

elektrischen Gleichfeldes wurde auch bei Kieselglas [Sal94, Rog96], SiO_x [Sal94, Osh96], Photoresist [Sal94], Mylar [Rog96, Osh96] und 5%K₂O:SiO₂ [Rog96] gefunden. Bei dielektrischen Gleichfeldmessungen mit einem Elektrometer fanden Höhler et al. [Höh91] bei BK7 und LiCl·5H₂O ebenfalls logarithmische Langzeitrelaxationen, allerdings wurde eine Zunahme der Kapazität beobachtet. Zudem wurden diese Messungen bei Temperaturen zwischen 1.5 K und 4 K durchgeführt.

5.2 Messungen an BK7 im Nullfeld

Um auszuschließen, daß es sich bei dem von Strehlow et al. beobachteten und in dieser Arbeit näher untersuchten Magnetfeldeffekt (siehe Abschnitt 6.1) um eine Eigenschaft

- des Glases BaO-Al₂O₃-SiO₂,
- von Elektrodenmaterial/-präparation oder
- der Probengröße

handelt, wurden Messungen an dem optischen Standardglas BK7 durchgeführt. Bei diesen Experimenten kam die in Abschnitt 4.6.2.2 beschriebenen BK7-Probe und der in Abschnitt 4.6.3 beschriebene Probenhalter zum Einsatz. Durch dielektrische Messungen im Nullfeld soll überprüft werden, daß Probenhalter, thermische Ankopplung und Präparation der Probe präzise Messungen der Kapazität und des Verlustwinkels im Temperaturbereich bis 15 mK ermöglichen.

Die an BK7 gemessene Temperaturabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung und der Änderung des Verlustwinkels ist in Bild 5.7 für verschiedene Anregungsspannungen aufgetragen. Die Daten der Kapazität wurde auf einen Tieftemperaturwert der Messung mit 30 mV Anregungsspannung bezogen, da diese im linearen Bereich liegt (siehe unten). Da keine Referenzmessung des Kondensators ohne Dielektrikum vorgenommen wurden, kann der Verlustwinkel nur relativ aufgetragen werden. Als Referenzwert für den Verlustwinkel wurde die Extrapolation für $T \rightarrow 0$ gewählt, da dort nach dem Standardtunnelmodell die durch Relaxationsprozesse hervorgerufenen Verluste verschwinden sollten (siehe Abschnitt 3.2.4.2).

Bei den dielektrischen Untersuchungen an BK7 im Nullfeld wurde darauf geachtet, daß es Messungen gibt, bei denen die Anregungsspannung im linearen Bereich liegt. Um die Bedingung für Linearität, $p_0 \mathcal{E} \ll k_B T$, für Temperaturen größer als 5 mK zu erfüllen, muß $\mathcal{E} \ll 20$ kV/m sein, wenn ein Dipolmoment der Größenordnung 1 Debye angenommen wird. In Bild 5.7 ist kein Unterschied zwischen den Meßwerten mit 30 mV bzw. 100 mV Anregungsspannung zu erkennen, daraus kann gefolgert werden, daß diese Anregungsspannungen im linearen Bereich liegen. Dies entspricht elektrischen Feldstärken von 75 V/m bzw. 250 V/m, was obige Bedingung erfüllt und sich gut mit der Beobachtung von Rogge et al. [Rog97] deckt, die bei SiO_x lineares Verhalten bis zu einem Feld von rund 1000 V/m sahen.

Nach dem Standardtunnelmodell sollte in der Näherung $\Delta_{0,\min} \rightarrow 0$, $E_{\max} \rightarrow \infty$ das Verhältnis der Steigungen der Kapazität links und rechts des Maximums $-2:1$ betragen (siehe Abschnitt 3.2.2.1). Beobachtet werden allerdings Werte, die näher bei $-1:1$ liegen, siehe Tabelle 5.1.

Eine weitere Vorhersage des Standardtunnelmodells ist die T^3 -Abhängigkeit des Anstieges der dielektrischen Verluste nach Gleichung (3.100). Bei Temperaturen von einigen hundert Millikelvin mündet der Verlustwinkel in ein temperaturunabhängiges Plateau, Gleichung (3.101). Der Übergang zwischen diesen beiden Näherungen erfolgt fließend, so

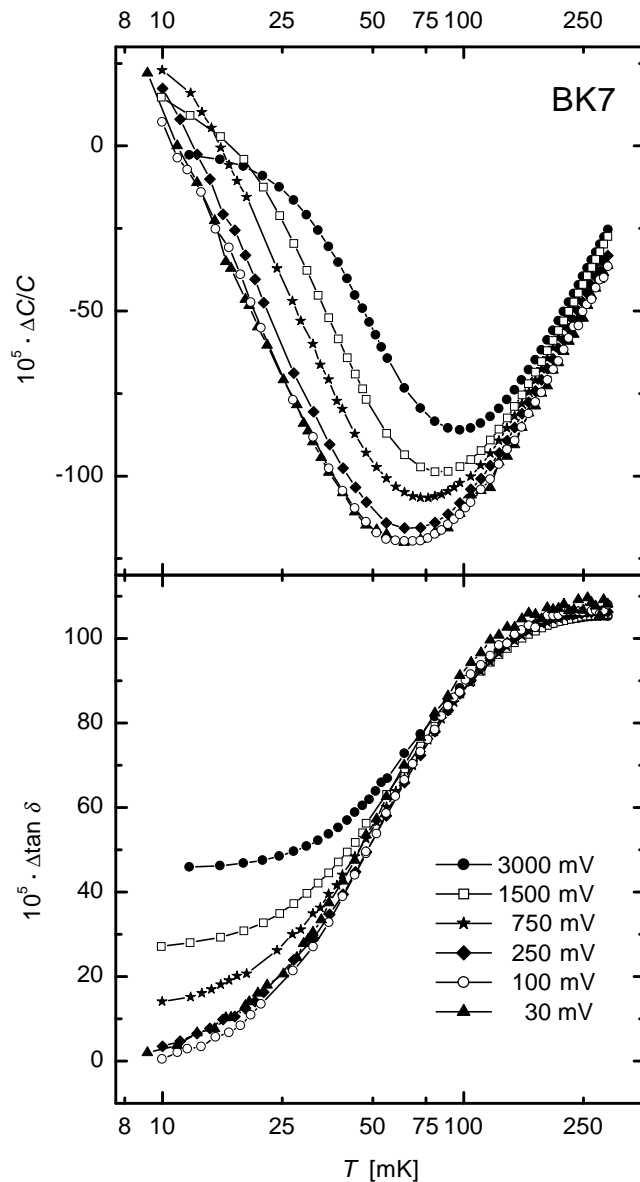


Bild 5.7: *Oben:* Relative Änderung der Kapazität von BK7 für verschiedene Anregungsspannungen. Die Kapazitätsänderung ist auf den Wert der Messung mit einer Anregungsspannung von 30 mV bei einer Temperatur von 11.2 mK bezogen.

Unten: Änderung des Verlustwinkels von BK7 für verschiedene Anregungsspannungen. Die Auftragung ist auf den Wert des Verlustwinkels für eine Anregungsspannung von 30 mV bezogen, wenn die Daten zu $T \rightarrow 0$ extrapoliert werden. Die eingezeichneten Linien verbinden lediglich die Meßpunkte.

daß eine rein kubische Temperaturabhängigkeit nur bei sehr tiefen Temperaturen beobachtbar ist. Zum Vergleich der Daten mit dem Standardtunnelmodell wurde deshalb eine numerische Rechnung benutzt, welche die Bedingungen $\Delta_{0,\min} \rightarrow 0$ bzw. $E_{\max} \rightarrow \infty$ durch $\Delta_{0,\min}/k_B = 10^{-5}$ K bzw. $E_{\max} = 10$ K realisiert. Im Temperaturbereich zwischen 10 mK und 1000 mK sind diese Näherungen für die Berechnung des Verlustwinkels unkritisch.

In Bild 5.8 ist diese Rechnung zusammen mit den Meßdaten des Verlustwinkels für eine Anregungsspannung von 30 mV aufgetragen. Wie in der doppellogarithmischen Auftragung erkennbar ist, folgen die dielektrischen Verluste in diesem Temperaturbereich der Rechnung nach dem Tunnelmodell.

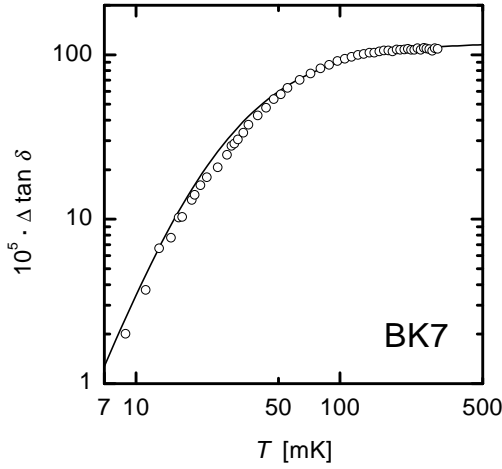


Bild 5.8: Änderung des Verlustwinkels von BK7, doppeltlogarithmisch aufgetragen. Die durchgezogene Linie ist eine numerische Rechnung nach dem Tunnelmodell, Gleichung (3.97b) mit den in Tabelle 4.9 angegebenen Materialkonstanten für BK7 und den Parametern $\Delta_{0,\min} = 10^{-5}$ K, $E_{\max} = 10$ K und $\overline{P}p_0^2 = 1.28 \cdot 10^{-13}$ C²/Jm.

Material	Frequenz (Hz)	Spannung (mV)	Feldstärke (V/m)	S_{res} $\cdot 10^{-3}$	S_{rel} $\cdot 10^{-3}$	Verhältnis $S_{\text{res}}/S_{\text{rel}}$
BK7	1000	30	75	-1.91	1.75	-1.09
BK7	1000	100	250	-2.06	1.70	-1.21
BK7	1000	250	625	-2.07	1.71	-1.21
BK7	1000	750	1875	-2.03	1.74	-1.17
BK7	1000	1500	3750	-1.95	1.73	-1.13
BK7	1000	3000	7500	-1.79	1.65	-1.08
BK7 [Rog97]	5000	10	200	-2.20		

Tabelle 5.1: Steigungen der Kapazität $S = (\Delta C/C)/\Delta \log_{10} T$ von BK7 im resonanten Tieftemperaturbereich S_{res} und im relaxierendem Bereich S_{rel} für verschiedene Anregungsspannungen (siehe Bild 5.7). Zusätzlich ist das Verhältnis der beiden Steigungen und zum Vergleich ein Literaturwert aus [Rog97] angegeben. Die Werte der Messung mit einer Anregungsspannung von 30 mV sind aufgrund von Meßgenauigkeiten allerdings mit größeren Fehlern behaftet.

5.2.1 Anpassung mit $\Delta_{0,\min}/k_B$ im Millikelvinbereich

Die gemessenen Daten der relativen Kapazitätsänderung und der Änderung des Verlustwinkels können besser durch Rechnungen beschreiben werden, wenn eine minimale Tunnelaufspaltung im mK-Bereich eingeführt wird. Neben den Materialkonstanten gehen in die Rechnungen die Parameter $\overline{P}p_0^2$, $\Delta_{0,\min}$ und E_{\max} ein.

Zur Anpassung wurde der Parameter $\overline{P}p_0^2$ aus dem Plateauwert des Verlustwinkels bei Temperaturen von $T > 250$ mK nach Gleichung (3.101) aus den Meßdaten ermittelt. Die Doppelintegrale (3.97) des Relaxationanteils und das Integral (3.95) des resonanten Prozesses wurden numerisch mit Mathematica [Wol96] gelöst. Bild 5.9 zeigt die relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels, einerseits Meßdaten für 30 mV, andererseits die Rechnungen nach dem Tunnelmodell, für verschiedene Werte von $\Delta_{0,\min}$ und $\overline{P}p_0^2$. Die obere Grenze der Integration über Δ_0 wurde auf $E_{\max}/k_B = 10$ K fest-

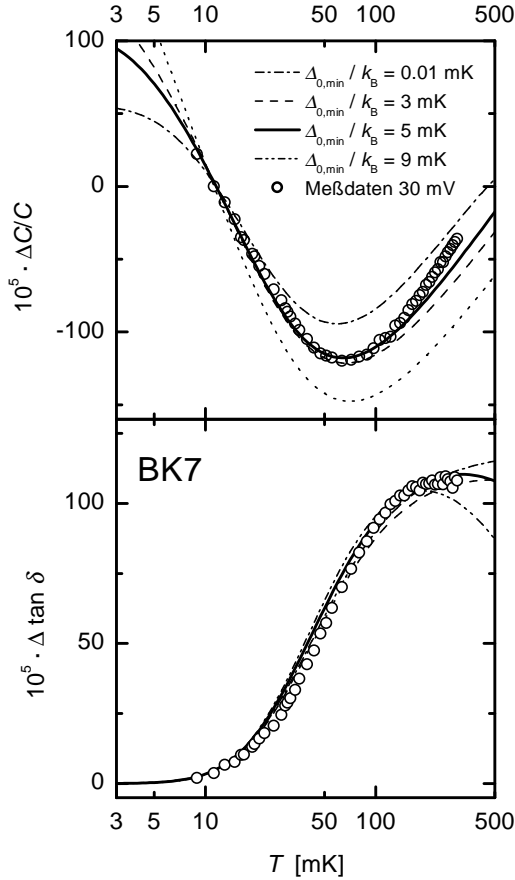


Bild 5.9: Relative Änderung der Kapazität und Änderung des Verlustwinkels von BK7. Neben Meßdaten (offene Kreise) für eine Anregungsspannung von 30 mV sind Rechnungen nach dem Tunnelmodell, Gleichungen (3.97) und (3.95) für folgende Werte von $\Delta_{0,\min}$ und $\overline{P}p_0^2$ eingezeichnet:

strichpunktiert: $\Delta_{0,\min}/k_B = 0.01$ mK ,

$\overline{P}p_0^2 = 1.28 \cdot 10^{-13}$ C/Jm,

gestrichelt: $\Delta_{0,\min}/k_B = 3$ mK ,

$\overline{P}p_0^2 = 1.28 \cdot 10^{-13}$ C/Jm,

durchgezogen: $\Delta_{0,\min}/k_B = 5$ mK,

$\overline{P}p_0^2 = 1.40 \cdot 10^{-13}$ C/Jm,

punktiert: $\Delta_{0,\min}/k_B = 9$ mK ,

$\overline{P}p_0^2 = 1.45 \cdot 10^{-13}$ C/Jm.

Die Materialgrößen für BK7 sind in Tabelle 4.9 angegeben und $E_{\max}/k_B = 10$ K.

gelegt. Wie später dargelegt wird, hat dies im Vergleich zu $E_{\max} \rightarrow \infty$ keinen Einfluß im betrachteten Temperaturbereich. Zusätzlich ist eine Kurve für die Vorhersage des Standardtunnelmodells mit einem aus der maximalen Barrierenhöhe abgeschätzten Wert von $\Delta_{0,\min}/k_B = 10^{-5}$ K eingezeichnet. Bei der Kapazität wurden die Rechnungen den Meßdaten bei $T = 11.2$ mK angepaßt, da dort Relaxationsmechanismen noch keine Rolle spielen.

Ein Wert zwischen 3 mK und 5 mK für $\Delta_{0,\min}/k_B$ kann die Meßwerte der Kapazität im Tieftemperaturbereich besser beschreiben. Bei höheren Temperaturen, wenn Relaxationsbeiträge dominieren, ist eine Abweichung erkennbar. Dies deutet darauf hin, daß die alleinige Berücksichtigung des Einphononen-Relaxationsprozesses den Relaxationsbeitrag zur Kapazität nicht vollständig beschreibt. Die aus den Meßdaten erhaltene Abschätzung für $\Delta_{0,\min}$ ist jedoch sehr grob, da der Einfluß des Parameters auf den Verlauf der Kapazität erst bei tiefen Temperaturen, im Bereich von $\Delta_{0,\min}/k_B$ signifikant wird.

5.2.2 Einfluß von E_{\max}

In numerische Rechnungen nach dem Tunnelmodell, Gleichungen (3.97) und (3.95), geht auch eine obere Grenze E_{\max} für die Integration über die Tunnelaufspaltung Δ_0 ein. Eine

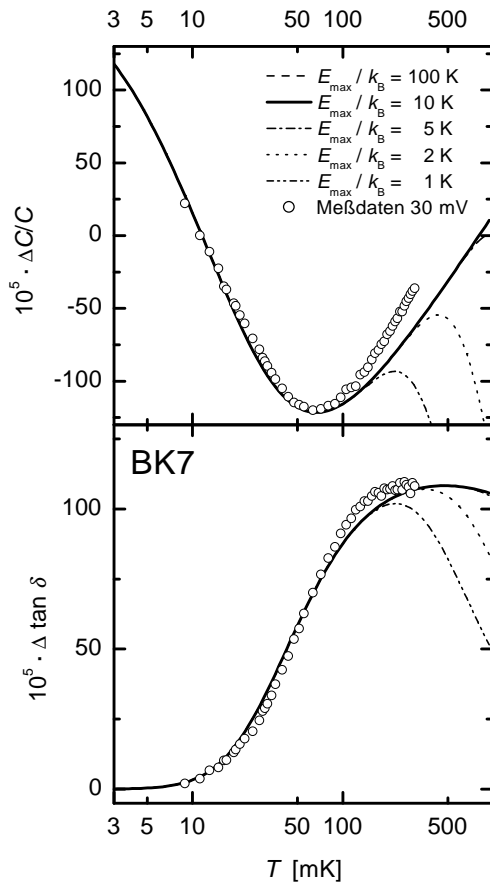


Bild 5.10: Relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels von BK7. Neben Meßdaten (offene Kreise) für eine Anregungsspannung von 30 mV sind numerische Rechnungen nach dem Tunnelmodell, Gleichungen (3.97) und (3.95) für verschiedene Werte von E_{\max} eingezeichnet. Die Materialgrößen für BK7 sind in Tabelle 4.9 angegeben und $\Delta_{0,\min}/k_B = 3$ mK, $\overline{P}p_0^2 = 1.28 \cdot 10^{-13}$ C/Jm. Die Kurven für $E_{\max}/k_B = 10$ K und 100 K sind im dargestellten Temperaturbereich deckungsgleich, für $E_{\max}/k_B = 5$ K lassen sich nur oberhalb von 700 mK Differenzen erkennen.

Begrenzung von E_{\max} auf Werte im Kelvinbereich beeinflusst den Relaxationsanteil der dielektrischen Suszeptibilität.

In Bild 5.10 sind Rechnungen nach dem Tunnelmodell, Gleichungen (3.97) und (3.95) für verschiedene Werte von E_{\max} dargestellt. Es wird deutlich, daß nur sehr kleine Werte der oberen Integrationsgrenze einen Einfluß auf den dargestellten Temperaturbereich haben. Zur Beschreibung der beobachteten Abweichung vom Standardtunnelmodell kommt eine Variation der oberen Integrationsgrenze demzufolge nicht in Frage.

5.2.3 Vergleich mit Daten anderer Autoren

Das vom Standardtunnelmodell abweichende Steigungsverhältnis der Kapazität nahe $-1:1$ wurde auch in anderen Arbeiten bei dielektrischen Untersuchungen an BK7 gefunden, z. B. von Bechinger [Bec90] und Rogge et al. [Rog97]. Auch bei dielektrischen Messungen an anderen Gläsern konnte dieses abweichende Verhalten nachgewiesen wer-

den, so z. B. bei Suprasil W³ [Bec90, Cla94] und Suprasil 1⁴ [Bec90].

Wie in Abschnitt 3.2.4.3 ausgeführt, können akustische Messungen analog zu den dielektrischen Messungen beschrieben werden, für die relative Schallgeschwindigkeitsänderung erhält man ein theoretisch erwartetes Steigungsverhältnis von 2:–1. Auch bei diesen Experimenten wurde ein von den Vorhersagen des Standardtunnelmodells abweichendes Verhältnis nahe 1:–1 beobachtet, z. B. bei den Materialien Suprasil W, Deckglas [Cla94] und amorphem GeO₂ und B₂O₃ [Rau95]. Dies deutet darauf hin, daß sich die Abweichung vom Standardtunnelmodell im Realteil der dielektrischen Funktion nicht auf Tunnelsysteme mit Dipolmoment beschränkt. Das einzige Material, bei dem bei dielektrischen Messungen bisher ein Steigungsverhältnis nahe –2 : 1 gefunden wurden, ist das Polymer Mylar [Rog97].

Der Verlustwinkel – siehe Bilder 5.8 und 5.9 unten – folgt den Rechnungen nach dem Standardtunnelmodell. Allerdings muß hierbei beachtet werden, daß die Anpassung sehr empfindlich auf Verschiebungen des Referenzwertes der Meßwerte reagiert. Da keine Messung ohne Dielektrikum vorgenommen wurde, ist dieser jedoch nicht bekannt. Andere Autoren fanden im Verlustwinkel bei dielektrischen Messungen an BK7 ebenfalls keine Abweichung vom Standardtunnelmodell [Bec90]. Bei neueren akustischen Messungen an BK7 hingegen wurde eine geringere Temperaturabhängigkeit des Verlustwinkels gefunden als, vom Standardtunnelmodell vorhergesagt wird. [Lay00]. Auch an anderen Materialien zeigte der Verlustwinkel eine schwächere Temperaturabhängigkeit als durch Rechnungen nach dem Tunnelmodell erwartet wird, z. B. an Kieselglas [Cla00a] und Fs21⁵ [Lay00].

5.2.4 Diskussion von $\Delta_{0,\min}$

Minimale Tunnelaufspaltungen im Millikelvinbereich werden auch in anderen Arbeiten angegeben, siehe Tabelle 5.2. Sowohl aktuelle Wärmepulsmessungen als auch ältere Messungen der spezifischen Wärme von Lasjaunias et al. [Las78] konnten von Strehlow et al. [Str94, Str96] mit einem $\Delta_{0,\min}/k_B$ von 1...2 mK beschrieben werden. Das Abknicken der Kapazität unterhalb einer Temperatur von rund 10 mK in dielektrischen Messungen konnte ebenso durch ein hohes $\Delta_{0,\min}$ beschrieben werden, z. B. für die in dieser Arbeit untersuchten Gläser BaO-Al₂O₃-SiO₂ [Str00] und BK7 [Rog97]. Die Kapazität von Kieselglas zeigt ebenfalls ein Abknicken im Tieftemperaturbereich unterhalb von 8 mK. Mit einem $\Delta_{0,\min}/k_B$ zwischen 3 mK und 4 mK konnten auch diese Daten beschrieben werden [Rog97, vR98].

Die kleinste Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$ kann im Standardtunnelmodell aus der größten

³Ein sehr reines synthetisches Kieselglas mit einem Gehalt an Hydroxyl-Ionen kleiner als 5 ppm. Dieses Glas wurde inzwischen durch Suprasil 300 ersetzt, das noch weniger OH[–] (<1 ppm) enthält [Her94]. Beide Gläser werden produziert von Heraeus Quarzglas, Hanau.

⁴Synthetisches Kieselglas mit rund 1000 ppm OH[–] von Heraeus Quarzglas, Hanau [Her94].

⁵Hierbei handelt es sich um ein fotostrukturierbares Multikomponentenglas mit den Hauptbestandteilen SiO₂, Li₂O, Al₂O₃ und K₂O [Lay00].

Material	Frequenz (Hz)	el. Feldstärke (V/m)	$\Delta_{0,\min}/k_B$ (mK)	Referenz
BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	1000	15000	12.2	[Str00]
BK7	1000	75	3...5	Diese Arbeit
BK7	5000	200	2.2	[Rog97]
5% K:SiO ₂	5000	500	1.3	[Rog97]
10% K:SiO ₂	5000	250	1.4	[Rog97]
SiO _x	5000	250	3.3	[Rog97]
Suprasil (330...1000 ppm OH ⁻)	1000	3750	4	[vR98]
Homosil	1000	1250	4	[vR98]

Tabelle 5.2: Literaturwerte von $\Delta_{0,\min}$, erhalten aus dielektrischen Messungen für verschiedene Materialien. Der Wert für BaO-Al₂O₃-SiO₂ wurde allerdings aus einer Messung ermittelt, die mit einer weit im nichtlinearen Bereich liegenden Anregungsspannung durchgeführt wurde.

Barrierrhöhe abgeschätzt werden. Häufig wird angenommen, daß bei der Glasübergangstemperatur T_g die größtmöglichen Barrieren mit einer Energie von $V_B = k_B T_g$ „eingefroren“ werden. Bei einer Glasübergangstemperatur von 830 K für BK7 (siehe Tabelle 4.9) kann $\Delta_{0,\min}/k_B$ mit Hilfe der Gleichung (3.61) und den Daten für SiO₄-Tetraeder ($m = 2.7 \cdot 10^{-25}$ kg, $l = 2 \cdot 10^{-11}$ m [Buc84]) grob auf $\lesssim 10^{-5}$ K abgeschätzt werden. In der Literatur werden Werte von 10^{-8} K bis 10^{-5} K angegeben [Bur98]. Dies widerspricht natürlich den obigen Anpassungen mit einem $\Delta_{0,\min}/k_B$ im Millikelvinbereich.

Wird die in Abschnitt 3.3.1 beschriebene mehrdimensionale Erweiterung des Standardtunnelmodells betrachtet, dann kann es durchaus Barrierenhöhen mit Energien bis zu T_g/k_B geben. Nach Bild 3.9 gibt es für das tunnelnde Teilchen statt des Tunnelns durch die Barriere allerdings auch die Möglichkeit, mit einer dreidimensionalen Bewegung um die Barriere den Zustand zu wechseln. Die dann wirksame Barrierenhöhe ist wesentlich niedriger und somit kann ein $\Delta_{0,\min}/k_B$ im Millikelvinbereich realisiert werden.

Da nach Gleichung (3.61) eine untere Grenze von $\Delta_{0,\min}$ dem Tunnelparameter λ eine obere Grenze vorgibt, gibt es keine Zweiniveausysteme mit großen Barrierenhöhen V_B mehr. Dadurch stehen im Temperaturbereich oberhalb von rund 500 mK weniger Tunnelsysteme mit passender Energieaufspaltung zur Verfügung als im Standardtunnelmodell. Wie Bild 5.9 entnommen werden kann, bildet dann der Verlustwinkel im Bereich von einigen hundert Millikelvin kein Plateau, sondern nimmt wieder ab. Um die Meßergebnisse konsistent beschreiben zu können, müsste dann ein weiterer Relaxationsmechanismus postuliert werden, der im Bereich von 100 mK einsetzt. Allerdings zeigen dielektrische Messungen an BK7 und Suprasil I [Bec90] und akustische Messungen an BK7 und Fs21 [Lay00] einen leichten Abfall des Verlustwinkels bzw. der inneren Reibung im „Plateaubereich“. Dies könnte auf ein $\Delta_{0,\min}/k_B$ im Millikelvinbereich hindeuten.

Eine weitere Möglichkeit, die Abweichungen vom Standardtunnelmodell zu beschrei-

ben, besteht darin, eine untere Grenze für die Verteilung der Asymmetrieenergien Δ anzunehmen [Cla00b]. Die Annahme eines Δ_{\min}/k_B von einigen Millikelvin verändert nur den Realteil der Dielektrizitätskonstanten, der Imaginärteil wird in dem betrachteten Temperaturbereich nicht beeinflusst. Mit diesem Ansatz würde die oben beschriebene Unstimmigkeit im Verlustwinkel nicht auftreten. Allerdings gibt es für eine starke Unterdrückung der Zweiniveausysteme mit kleinen Asymmetrieenergien keine theoretische Begründung.

5.2.5 Abweichungen vom Standardtunnelmodell

Mit zunehmender Anregungsspannung sieht man in Bild 5.7 deutlich eine Abhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften von der Spannung. Das Minimum der Kapazität verschiebt sich zu höheren Temperaturen und im resonanten Bereich weicht die Kapazität bei immer höheren Temperaturen vom logarithmischen Verhalten ab. Zudem nähert sich das Steigungsverhältnis weiter dem Wert $-1:1$ an (siehe Tabelle 5.1). Auch der Verlustwinkel zeigt eine Spannungsabhängigkeit des Tieftemperaturverhaltens.

In der Literatur finden sich diese Effekte ebenfalls bei Messungen mit höheren elektrischen Felder. Eine Abhängigkeit von der Anregungsspannung konnte an BK7 und anderen Gläsern nachgewiesen werden [Rog97].

Bei der Beschreibung der Tieftemperatureigenschaften von Gläsern wurde die Polarisation als lineare Funktion des elektrischen Feldes angesetzt (3.68), deshalb ist in der dielektrischen Suszeptibilität keine Abhängigkeit vom elektrischen Feld enthalten. Diese Annahme ist allerdings nur für Felder gerechtfertigt, für die $p_0 \mathcal{E} \ll k_B T$ gilt. Bei höheren Feldern müssen auch nichtlineare Beiträge des elektrischen Feldes berücksichtigt werden. Zur Beschreibung der nichtlinearen Effekte bei akustischen Messungen wurde von Stockburger et al. [Sto95] eine nichtlineare Theorie entwickelt. Die Autoren berechneten die verallgemeinerte Suszeptibilität mit Hilfe einer Ratengleichung in Störungsrechnung zweiter Ordnung. Für die Kapazität ergibt sich aus der Rechnung eine Zunahme der Steigung im resonanten Bereich mit wachsender Anregungsspannung und ein spannungsunabhängiges Plateau bei tiefsten Temperaturen.

Obwohl akustische Messungen an Kieselglas [Esq92] qualitativ mit dieser Rechnung übereinstimmen, kann das gefundene nichtlineare dielektrische Verhalten bei BK7 und Kieselglas [Rog97] mit dieser Theorie nicht beschrieben werden.

Das Abflachen der Kapazität und des Verlustwinkels bei höheren Anregungsspannungen läßt sich möglicherweise durch Überhitzungseffekte erklären. Bild 5.11 zeigt eine Rechnung der in der Probe dissipierten Leistung nach Gleichung (5.2) für die eingesetzten Anregungsspannungen. Zur Abschätzung der Selbstheizung wird der Beitrag, der über die Glimmerscheibe und den Boden des Gehäuses abgeführt vernachlässigt, da einerseits der Isolator Glimmer im Tieftemperaturbereich eine niedrige Wärmeleitfähigkeit aufweist und einige Wärmeübergangswiderstände in die Rechnung eingehen würden. Bei Wärmeableitung über die zwei Koaxialkabel (Kupfer-Innenleiter, $\varnothing 0.1$ mm, $\kappa \approx 0.1$ W/Km bei 10 mK, Länge 3 cm) und einer Verlustleistung 10^{-10} W ist nach (5.3) mit einer minima-

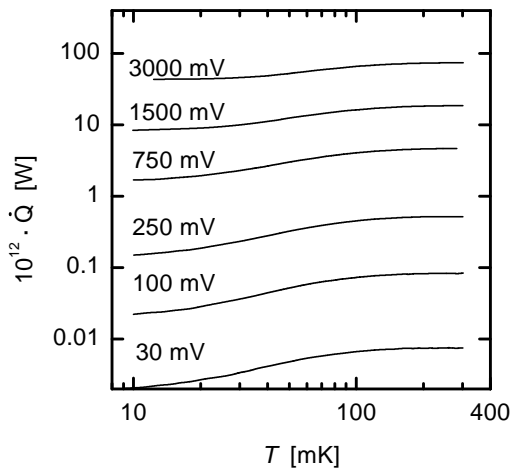


Bild 5.11: Abschätzung der dielektrischen Verlustleistung in der BK7-Probe nach Gleichung (5.2) bei einer Meßfrequenz von $f = 1$ kHz für verschiedene Anregungsspannungen.

len Temperaturerhöhung um rund 2 mK zu rechnen. Diese Abschätzung stellt aufgrund des unbekanntem Wärmeübergangswiderstands zwischen Glas und Goldschicht und der schlechten Wärmeleitung in der Glasprobe selbst nur eine untere Grenze für die Selbstheizung dar. Im Gegensatz zu den Messungen am BaO-Al₂O₃-SiO₂-Dickfilmsensor ist die BK7-Probe im Tieftemperaturbereich bei Messungen mit Anregungsspannungen von 1500 mV oder höher wahrscheinlich überhitzt.

Messungen mit Anregungsspannungen bis 250 mV liefern hingegen mit den Literaturwerten übereinstimmende Daten. Bei Temperaturen oberhalb von 15 mK kann auch mit der Anregungsspannung von 750 mV gearbeitet werden, falls kleine nichtlineare Effekte akzeptiert werden. Somit ist der Probenhalter und die Probenpräparation geeignet, die dielektrischen Eigenschaften von BK7-Scheiben im Magnetfeld zu untersuchen.

6 Dielektrische Untersuchungen im Magnetfeld

Wie in Abschnitt 2.2.2 dargestellt ist, wurde bei sehr kleinen Magnetfeldern ($30\ \mu\text{T}$) und Temperaturen unterhalb von $5\ \text{mK}$ an $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ eine Magnetfeldabhängigkeit der Kapazität entdeckt. Eine Aufgabe dieser Arbeit war es, diese Magnetfeldeffekte zu verifizieren und Untersuchungen bei höheren Temperaturen und Magnetfeldern durchzuführen.

6.1 Messungen an $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ im Magnetfeld

Erste Messungen des $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Dickfilmsensors wurden am Kryostaten MK2 an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt durchgeführt. Der im Kupfergehäuse gekapselte Sensor war an einer Silberstange montiert, mit deren Hilfe der Sensor im Feld des Magneten der demontierten Kernentmagnetisierungsstufe plaziert wurde. Die Silberstange selbst war mit der Mischkammer des Kryostaten verbunden. Zur Temperaturregelung kam ein Kohlesensor zum Einsatz und die Temperatur wurde mit einem ^3He -Schmelzdruckthermometer bestimmt. Bei den Messungen wurde auf eine feste Temperatur geregelt, und anschließend das Magnetfeld in Stufen variiert. Die Dauer einer Stufe des Magnetfelds betrug 30 Minuten, nach einer Wartezeit von 15 Minuten wurde der Meßwert aus einer Mittelung der Daten über einen Zeitraum von 15 Minuten ermittelt.

Bild 6.1 zeigt die relative Änderung der Kapazität von $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ bei Temperaturen von $15\ \text{mK}$ bis $45\ \text{mK}$ in Magnetfeldern bis $200\ \text{mT}$ für zwei verschiedene Anregungsspannungen. Zwei Beobachtungen sind bemerkenswert: Der Magnetfeldeffekt ist auch bei Temperaturen über $5\ \text{mK}$ sichtbar, und er verstärkt sich zu tiefen Temperaturen drastisch. Außerdem deutet sich ein Maximum an, daß sich mit abnehmender Temperaturen zu höheren Magnetfeldern verschiebt. Zusätzlich ist zu sehen, daß das Magnetfeldverhalten abhängig von der Anregungsspannung der Brücke ist.

Leider stand am MK 2 nur begrenzt Meßzeit zur Verfügung, so daß Messungen bei höheren Feldern nicht durchgeführt werden konnten. Aufgrund einer Beschränkung der Datenaufnahmemöglichkeiten konnte außerdem der Verlustwinkel nicht aufgenommen werden.

Um Messungen in höheren Magnetfeldern vorzunehmen, wurde Meßzeit am Hochfeldmagnetlabor Grenoble beantragt. Dort stand der resistive Magnet M10 mit Magnet-

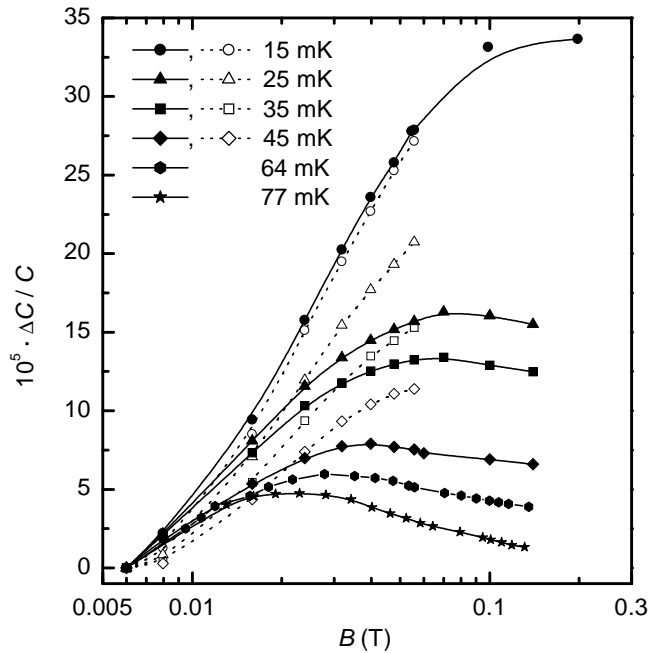


Bild 6.1: Relative Änderung der Kapazität von BaO-Al₂O₃-SiO₂ bei verschiedenen Temperaturen im Magnetfeld bis 200 mT. Die Meßspannung betrug 750 mV (geschlossene Symbole, durchgezogene Linien) bzw. 1500 mV (offene Symbole, gepunktete Linien). Um die abgeschätzte Remanenz des Magneten von 6 mT zu berücksichtigen, wurde jeweils der erste Meßpunkt auf der Abszisse um diesen Betrag verschoben. Zum Vergleich sind zusätzlich Daten bei Temperaturen von 64 mK und 77 mK aus Bild 6.2 eingezeichnet.

feldern bis zu 28 T zur Verfügung (genauere Beschreibung siehe Abschnitt 4.3.3). Zur Thermalisierung wurde die BaO-Al₂O₃-SiO₂-Probe zusammen mit einem Heizer und einem Thermometer direkt in die Mischkammer eingebaut. Bei der Probe handelte es sich um einen Dickfilm-Sensor, der bei dieser Messung *nicht* gekapselt war. Das eingesetzte RuO₂-Thermometer war im Magnetfeld nicht kalibriert, so daß die Temperaturwerte bei höheren Feldern aufgrund des Magnetowiderstandes unsicher sind.

Das Feld wurde mit der kleinstmöglich einstellbaren Rate von 0.5 mT/s hochgefahren, um die durch Wirbelstromheizung erzeugte Wärmelast in den Elektroden des Sensors und den Zuleitungen gering zu halten. Offensichtlich konnte die so erzeugte Wärmelast durch die ³He-⁴He-Mischung abgeführt werden, da die Meßdaten beim Aufmagnetisieren und Entmagnetisieren in relativ guter Übereinstimmung waren.

Die Stromversorgung des Magneten ist nicht zur Steuerung kleinster Ströme ausgelegt. Dadurch kann das Magnetfeld im Bereich zwischen 0 mT und rund 5 mT nicht variiert werden, sondern wird innerhalb von wenigen Millisekunden sprunghaft eingeschaltet. Die im Volumen V durch Wirbelströme erzeugte Leistung \dot{Q}_{ec} kann durch [Sto74]:

$$\dot{Q}_{ec} = \frac{VG}{\rho_s} \dot{B}^2, \quad (6.1)$$

mit einem Geometriefaktor G und dem spezifischen Widerstand ρ_s berechnet werden. Die Zeitableitung des Magnetfeldes geht quadratisch in die Leistung ein. Durch die schnelle sprunghafte Variation des Magnetfeldes wurden Wirbelströme erzeugt, die den Kryostaten einige 10 Minuten aufheizten. Deshalb wurde die Feldrampe jeweils bei 5 mT gestartet, und es gibt keine Meßwerte zwischen 0 mT und 5 mT.

Bild 6.2 zeigt Messungen für Temperaturen zwischen 64 mK und 118 mK in Magnetfeldern bis 1 T. Das Maximum der Kapazität bei einem Feld von 30 mT ist bei einer

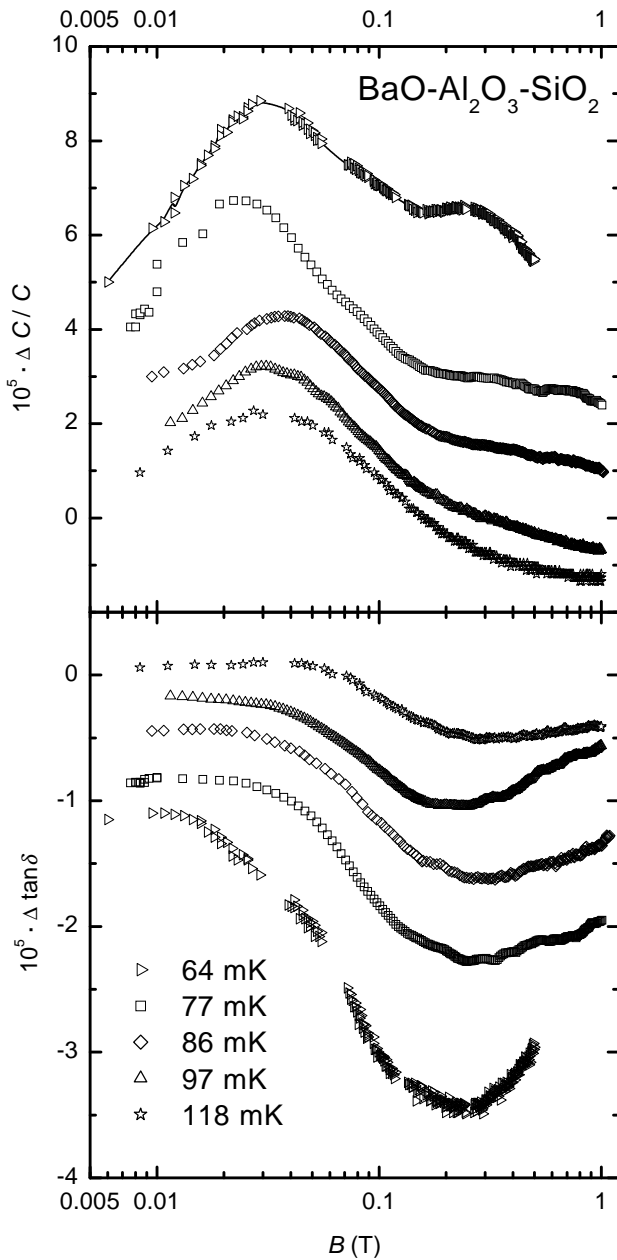


Bild 6.2: Relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels von BaO-Al₂O₃-SiO₂ im Magnetfeld bis 1 T für Temperaturen zwischen 64 mK und 118 mK. Die Anregungsspannung war 750 mV und das Magnetfeld wurde mit einer Rate von 0.5 mT/s hochgefahren. Zur Verbesserung der Übersichtlichkeit wurden die Daten durch Mittelung jeweils zehn benachbarter Meßpunkte geglättet und sind gegeneinander verschoben dargestellt.

Temperatur von 64 mK nun deutlich ausgeprägt erkennbar. Zudem deutet sich ein zweites Maximum bei einem Magnetfeld von 250 mT an. Die Effekte nehmen – wie schon vorher beobachtet – mit zunehmender Temperatur ab.

Der zum ersten Mal gemessene Verlustwinkel zeigt ebenfalls eine deutliche Magnetfeldabhängigkeit. Ein Minimum bei einem Magnetfeld von rund 250 mT ist bei allen dargestellten Temperaturen sichtbar. Bei kleinen Magnetfeldern durchläuft er zusätzlich ein Maximum, wie zumindest in der Messung bei einer Temperatur von 77 mK erkennbar ist. Durch den Vergleich des Verlaufs von Verlustwinkel und Kapazität kann ein Tem-

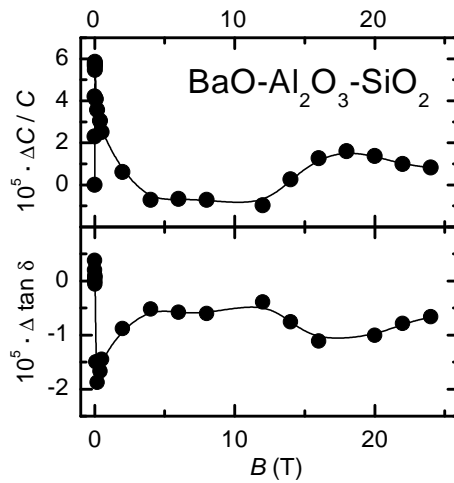


Bild 6.3: Relative Änderung der Kapazität und Änderung des Verlustwinkels bei $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ im Magnetfeld bis 24 T. Die Temperatur war 64 mK, die Anregungsspannung der Meßbrücke 750 mV.

peratureffekt als Ursache für die beobachtete Abhängigkeit ausgeschlossen werden. Die Temperaturabhängigkeit von relativer Kapazitätsänderung und Verlustwinkel haben in diesem Temperaturbereich ein entgegengesetztes Vorzeichen (siehe Bild 5.7). In Bild 6.2 ist jedoch zu sehen, daß es Bereiche gibt, in denen die Änderungen von Kapazität und Verlustwinkel gleichläufig sind.

Zum Vergleich mit den am MK2 ermittelten Daten sind in Bild 6.1 zwei Datensätze aus Bild 6.2 eingezeichnet. Die in Grenoble erhaltenen Ergebnisse passen gut in das Bild der vorhandenen Daten.

Um die Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Funktion in hohen Magnetfeldern zu untersuchen, wurden Messungen bis 24 T vorgenommen. Bei diesen Experimenten konnte das Feld nicht mit der oben genannten Rate gefahren werden, da sonst die Meßzeit nicht ausgereicht hätte. Stattdessen wurde das Magnetfeld mit einer Rate von 10 mT/s in Stufen erhöht. Nach dem Erreichen einer Stufe wurde jeweils eine halbe Stunde gewartet, bis sich die Temperatur der Mischkammer wieder stabilisiert hatte. Um den Meßwert zu erhalten, wurden die Daten über den Zeitraum einer halben Stunde gemittelt. Das Meßergebnis ist in Bild 6.3 dargestellt.

Zusätzlich zu den schon in Bild 6.2 dargestellten Effekte bei kleinen Magnetfeldern kann bei einem Magnetfeld von rund 18 T ein weiteres Maximum erkannt werden. Leider kann bei diesem Maximum ein Meßartefakt nicht ausgeschlossen werden, da bei höheren Magnetfeldstärken aufgrund des vergrößerten Kühlwasserdurchfluß des Magneten Aufheizungseffekte durch Vibrationen entstanden.

Um die Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften genauer zu untersuchen, wurden weitere Messungen an $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Weiss, Technische Universität Karlsruhe, vorgenommen [Hau01]. Dort stand ein Verdünnungskryostat mit erreichbaren Temperaturen bis unter 20 mK und Magnetfeldern bis 12 T zur Verfügung. Die Probe, ein $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Dickfilmsensor, wurde in einer Silberfolie eingeklemmt montiert, die Deckelektrode war mit einem in verdünntem Isolationslack getränkten Zigarettenpapier elektrisch isoliert. Diese Anordnung wurde mit Hilfe mehrerer zusammengeschaubarer, geschlitzter Silberfolienstreifen

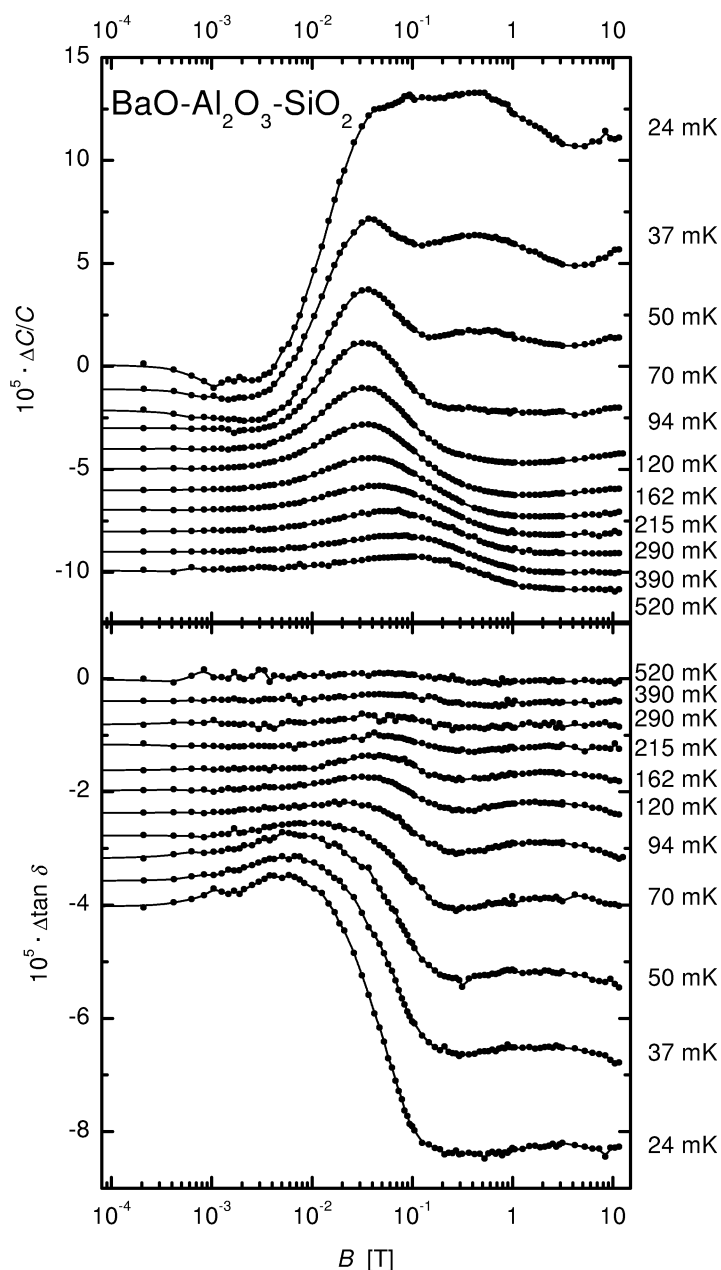


Bild 6.4: Relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels eines $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Dickfilmsensors für verschiedene Temperaturen in Magnetfeldern bis 12 T. Die Meßspannung betrug 750 mV. Zur besseren Unterscheidung sind die Kurven gegeneinander verschoben dargestellt. [Hau01]

an der Mischkammer befestigt. Bild 6.4 zeigt die bei einer Brücken-Anregungsspannung von 750 mV gemessenen Werte der Kapazität und des Verlustwinkels für Temperaturen zwischen 24 mK und 520 mK und in Magnetfeldern bis 12 T.

Es ist deutlich erkennbar, wie sich der Effekt bei tieferen Temperaturen verstärkt. Das Maximum der Kapazität verschiebt sich mit sinkender Temperatur zu tieferen Magnetfeldern. Ab einer Temperatur von 70 mK verschiebt es sich allerdings wieder zu höheren Magnetfeldern, was sich aber – wie weiter unten erläutert – auf zunehmende Abhängigkeit von der Anregungsspannung zurückführen läßt. Unterhalb einer Tempe-

ratur von 50 mK bildet sich ein Minimum bei einem Magnetfeld von wenigen Millitesla aus. Dieses Minimum war bei den Messungen in Bild 6.1 nicht sichtbar, da dort das Magnetfeld in wesentlich größeren Stufen variiert wurde. Das zweite Maximum, welches schon in den Meßdaten von Bild 6.2 andeutungsweise erkennbar war, ist nun stärker ausgeprägt. Der Magnetfeldeffekt in der Änderung des Verlustwinkels nimmt ebenfalls mit sinkender Temperatur zu.

Die in Bild 6.4 dargestellten Daten wurden mit einer relativ hohen Anregungsspannung gemessen, die einer elektrischen Feldstärke von 15 kV/m entspricht. Nach den Ausführungen in Abschnitt 5.2 kann in diesem Fall nicht mehr von einer linearen Betrachtungsweise ausgegangen werden. Da die Bedingung der Linearität $p_0 \mathcal{E} \ll k_B T$ temperaturabhängig ist, nehmen die durch die Anregungsspannung beeinflussten Effekte mit sinkender Temperatur zu.

Um die Abhängigkeit von der Anregungsspannung weiter zu untersuchen, wurden Messungen bei einer festen Temperatur von 50 mK mit verschiedenen Brückenspannungen durchgeführt. Bild 6.5 zeigt die Meßdaten für Magnetfelder bis 12 T. Bis zu einer Anregungsspannung von 100 mV, dies entspricht einem elektrischen Feld von 2 kV/m, gibt es keine Spannungsabhängigkeit des Effekts. Dieses Verhalten bestätigt die bei Messungen im Nullfeld gefundene Abhängigkeit (siehe Abschnitt 5.2).

Mit steigender Spannung verschiebt sich das erste Maximum zu höheren Magnetfeldern. Ein Minimum bei einem Feld von 3 mT und ein zweites Maximum bei einem Magnetfeld von rund 300 mT bilden sich heraus.

Die durch Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ gewonnenen Erkenntnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Der Magnetfeldeffekt der dielektrischen Eigenschaften ist *reproduzierbar*.
- Die gefundene Abhängigkeit ist *nichtmonoton*. Es handelt sich also nicht um die in Abschnitt 3.1.3.1, Seite 17 hergeleitete quadratische Magnetfeldabhängigkeit für nichtlineare Dielektrika. Zudem bedeutet dies, daß man von Hochfelddaten nicht auf das Niedrigfeldverhalten schließen kann.
- Durch Erhöhung der Anregungsspannung wird der Verlauf der dielektrischen Eigenschaften im Magnetfeld modifiziert.
- Es kann sich nicht um einen Temperatureffekt handeln. Im betrachteten resonanten Tieftemperaturbereich haben die Änderungen von Kapazität und Verlustwinkel bei Temperaturänderungen entgegengesetzte Vorzeichen. Die beobachteten Änderungen von Kapazität und Verlustwinkel im Magnetfeld sind jedoch nicht immer gegenläufig.
- Durch den Einsatz von verschiedenen Montagemethoden der Dickfilm-Probe kann das Kupfergehäuse und die thermische Ankopplung als Ursache für den Magnetfeldeffekt ausgeschlossen werden.

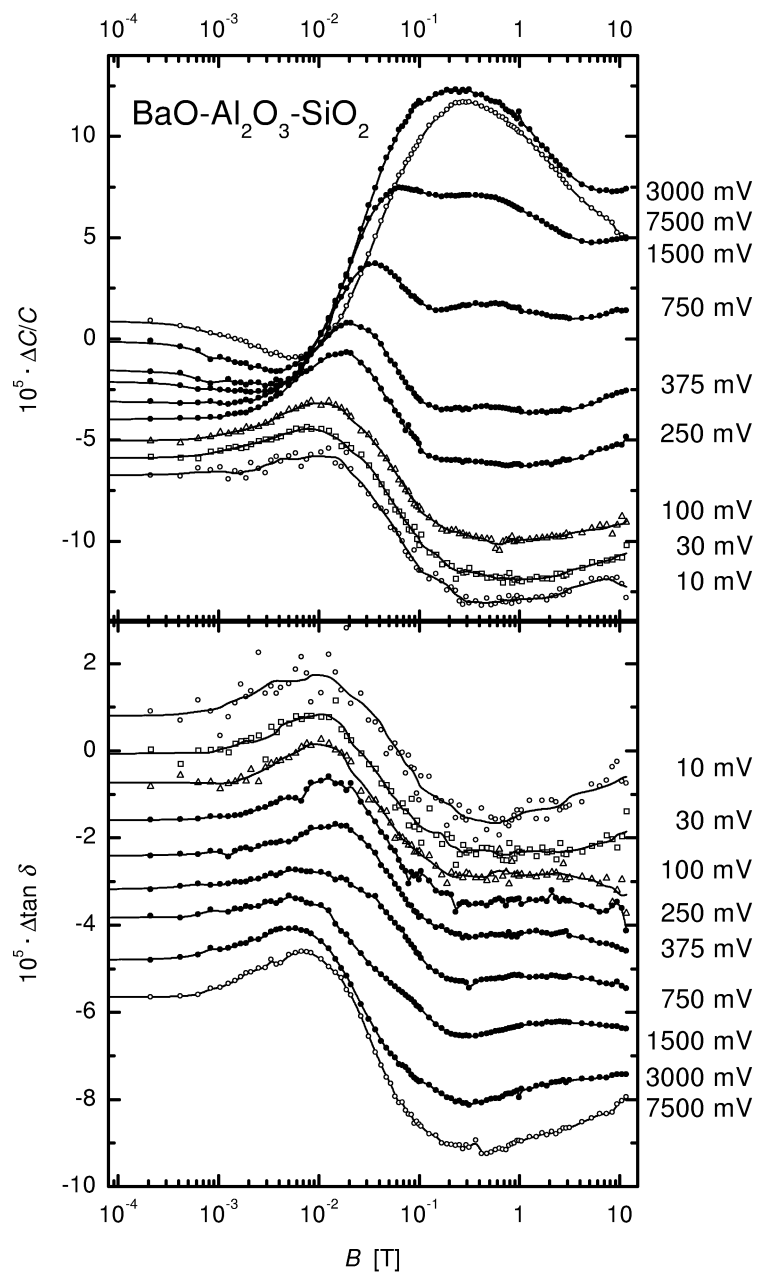


Bild 6.5: Relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels eines $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ -Dickfilmsensors bei Messung mit verschiedenen Anregungsspannungen in Magnetfeldern bis 12 T. Die Temperatur war 50 mK. [Hau01]

6.2 Messungen an BK7 im Magnetfeld

Nachdem die im vorigen Abschnitt beschriebenen Experimente an BaO-Al₂O₃-SiO₂ den Magnetfeldeffekt bestätigten, stellte sich natürlich die Frage, ob der Effekt eine spezielle Eigenschaft dieses Glases ist. Zudem wurden bei allen Messungen gleich präparierte Proben der gleichen Größe und Form verwendet. Ein Artefakt durch diese Eigenschaften, z. B. dem Material der Elektroden läßt sich deshalb nicht ausschließen.

Suszeptibilitätsuntersuchungen [Sie01] ergaben, daß paramagnetische Verunreinigungen in BaO-Al₂O₃-SiO₂ enthalten sind. Diese konnten nach einem Curie-Verhalten (3.27) durch eine Anpassung mit Spinquantenzahl $J=5/2$ und Landé-Faktor $g=2.23$ beschrieben werden. Dies deutet auf Eisenverunreinigungen von Fe³⁺ hin. Für in das Netzwerk von Gläsern eingebaute Fe³⁺-Verunreinigungen wurden Landé-Faktoren über $g=2$ gefunden [Ang76].

In Tabelle 6.1 sind die aus Suszeptibilitätsmessungen erhaltenen Fe³⁺-Konzentrationen aufgelistet. Die hohe Eisenkonzentration in BaO-Al₂O₃-SiO₂ könnte die komplizierte Abhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften vom Magnetfeld verursachen.

Zur weiteren Untersuchung von Magnetfeldabhängigkeiten der dielektrischen Eigenschaften wurden deshalb Untersuchungen an dem optischen Glas BK7 gemacht. Die Wahl fiel auf dieses Glas, da es praktisch keine Fe³⁺-Verunreinigungen enthält. BK7 ist ebenfalls ein Mehrkomponentenglas mit hohem intrinsischem Dipolmoment, das im Tieftemperaturbereich elektrisch und akustisch eingehend untersucht wurde.

6.2.1 Darstellung der Meßergebnisse

Bei den dielektrischen Messungen an BK7 kamen die in Abschnitt 4.6.2.2 bzw. 4.6.3 beschriebene Probe bzw. Probenhalter am Kryostaten MKA 3 zum Einsatz. Das Magnetfeld wurde in Stufen hochgefahren. Durch Wirbelstromheizung wird das Mischkammer-Strahlungsschild und der Probenhalter aufgeheizt. Ein zu schnelles Fahren des Magnetfeldes erzeugt eine hohe Wärmelast auf der Mischkammer, so daß die Mischkammertemperatur nicht reproduzierbar stabil gehalten werden kann. Bei den Messungen wurde deshalb das Magnetfeld mit der geringen Rate von 5 mT/min in Stufen variiert.

Material	Konzentration Fe ³⁺ (ppm)	Fehler (ppm)
BaO-Al ₂ O ₃ -SiO ₂	102	2
BK7	6	2
Duran	126	2

Tabelle 6.1: Konzentration der Fe³⁺-Verunreinigungen in den untersuchten Gläsern. Die Werte wurden aus Messungen der Gleichfeldsuszeptibilität ermittelt und mit $J=2.5$ und $g=2.23$ angepaßt. [Sie01].

Isotop	Mol- masse M_{mol} [g]	molares Volumen V_{mol} [cm ³]	Dichte ρ [g/cm ³]	relative Häufig- keit [%]	Kern- spin I	nukleares Moment μ [μ_{n}]	g- Faktor g_{n}	Quadrupol- moment Q [barn]
⁶ Li	6.941	13.02	0.533	7.5	1	1.163	1.163	0.00082
⁷ Li	6.941	13.02	0.533	92.5	3/2	4.204	2.803	-0.041
¹⁰ B	10.811	4.39	2.463	19.9	3	2.079	0.693	0.08459
¹¹ B	10.811	4.39	2.463	80.1	3/2	3.471	2.314	0.04059
¹⁷ O	15.999	17.36	0.922	0.038	5/2	-2.241	-0.896	-0.02558
²³ Na	22.990	23.78	0.967	100.0	3/2	2.863	1.909	-0.1089
²⁷ Al	26.982	10.00	2.698	100.0	5/2	4.309	1.723	0.1403
²⁹ Si	28.086	12.06	2.329	4.67	1/2	-0.962	-1.924	
³⁹ K	39.098	45.94	0.851	93.26	3/2	0.505	0.337	0.0601
⁴⁰ K	39.098	45.94	0.851	0.012	4	-1.451	-0.363	-0.0749
⁴¹ K	39.098	45.94	0.851	6.73	3/2	0.277	0.185	0.0733
¹³⁵ Ba	137.327	38.16	3.599	6.59	3/2	1.082	0.721	0.16
¹³⁷ Ba	137.327	38.16	3.599	11.23	3/2	1.210	0.807	0.245

Tabelle 6.2: Kernspin, nukleares magnetisches Moment, Landé-Faktor und Quadrupolmoment der Isotope mit Kernspin in den untersuchten Gläsern. Zum Vergleich sind auch die Molmasse der natürlichen Isotopenmischung, molares Volumen und relative Häufigkeit des Isotops in der natürlichen Zusammensetzung angegeben. Die Angaben sind [Win00] entnommen.

Nach dem Erreichen eines konstanten Magnetfeldes mußte zwischen einer halben Stunde (bei Magnetfeldern unterhalb von 100 mT) bis zu sechs Stunden (bei hohen Magnetfeldern im Bereich von 8 T) gewartet werden, bis Kapazität und Verlustwinkel den Gleichgewichtswert erreicht hatten.

Diese unerwartete hohe Zeit bis zum Erreichen des Gleichgewichts kann nicht allein auf Wirbelstromheizung zurückgeführt werden. Zur Erklärung dieses Verhaltens müssen die teilweise hohen nuklearen magnetischen Momenten der im Glas enthaltenen Isotope betrachtet werden. Tabelle 4.10, Seite 69 zeigt die ermittelte Zusammensetzung von BK7. In Tabelle 6.2 sind die Isotope mit Kernspin und deren nukleares magnetisches Moment aufgelistet. Die Hauptbestandteile von BK7 tragen einen Kernspin.

Ein Einfluß der Kernspins ist eine hohe spezifische Wärme der Glasprobe im Magnetfeld. Dies konnte auch experimentell nachgewiesen werden. Bild 6.6 zeigt die zeitliche Änderung der Kapazität der BK7-Probe, wenn die Mischkammer von 40 mK auf 20 mK abgekühlt wird. Es ist deutlich zu erkennen, wie sich in höheren Magnetfeldern die Zeit verlängert, bis die Probe nach der Temperaturänderung wieder ins Gleichgewicht kommt. Außerdem nimmt das im Nullfeld beträchtliche Rauschen, in Bild 6.6 unten gestrichelt eingezeichnet, in Feldern über 100 mT drastisch ab.

Die lange Thermalisierungszeit und die niedrige Magnetfeldvariationsrate führen da-

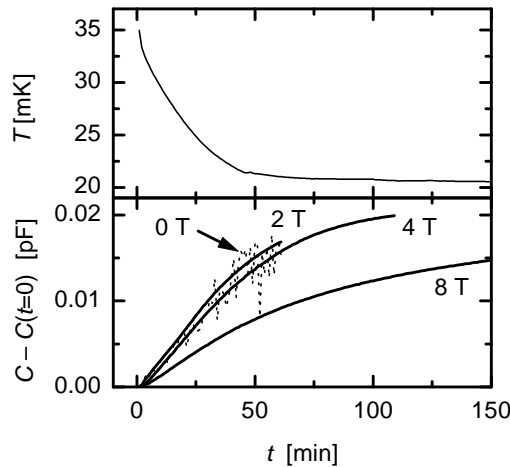


Bild 6.6: Einfluß des Magnetfeldes auf die Wärmekapazität der Probe. Oben: Zeitliche Änderung der Temperatur an der Mischkammer. Unten: Kapazitätsänderung der BK7-Probe in Magnetfeldern von 2 T bis 8 T (durchgezogene Linien) und im Nullfeld (gestrichelte Linie).

zu, daß die Zeit der Datenaufnahme für einen Meßpunkt in hohen Feldern sehr lange wird.

Bild 6.7 zeigt die relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels von BK7 in Magnetfeldern bis 8 T für Temperaturen zwischen dem Wolfram-Sprungpunkt $T_c = 15.4$ mK und 52 mK. Die Kapazität zeigt einen Magnetfeldeffekt, der sich mit abnehmender Temperatur verstärkt. Bei Magnetfeldern von rund 100 mT bildet sich ein Minimum heraus, zu höheren Feldern steigt die Kapazität weiter an. Bei kleinen Feldern von unter 10 mT könnte sich ein kleines Maximum andeuten. Der Verlustwinkel zeigt ebenfalls einen Magnetfeldeffekt, der eine geringere Temperaturabhängigkeit aufweist.

Bei den dielektrischen Messungen im Magnetfeld an BaO-Al₂O₃-SiO₂ (Bild 6.5) war eine starke Abhängigkeit des Effekts von der Anregungsspannung sichtbar, sobald diese im nichtlinearen Bereich lag. Der lineare Bereich wird bei dieser Temperatur (50 mK) durch eine maximale Anregungsspannung von 100 mV begrenzt, entsprechend einem elektrischen Feld von 2000 V/m.

Die gewählte Anregungsspannung von 750 mV, mit der die Messungen an BK7 durchgeführt wurden, bildete in dieser Hinsicht einen Kompromiß zwischen Meßauflösung und Linearität. Einerseits liegt das durch die Anregungsspannung erzeugte elektrische Feld mit 1875 V/m unter der genannten Grenze, allerdings ist diese Grenze aufgrund der Bedingung für die Linearität, $p_0 \mathcal{E} \ll k_B T$, temperaturabhängig. Daraus kann geschlossen werden, daß bei einer Temperatur von 15.4 mK die Grenze für lineares Verhalten bei einer Meßspannung von rund 250 V/m liegt. Dies war auch deutlich bei den Messungen an BK7 im Nullfeld (siehe Bild 5.7) zu sehen, bei denen lineares Verhalten d. h. Unabhängigkeit von der Anregungsspannung in diesem Temperaturbereich erst bei Spannungen von 250 mV und kleiner festgestellt werden konnte.

Bei einer Meßspannung von 250 mV war allerdings das Rauschen der Meßwerte so groß, daß eine zweifelsfreie Identifikation eines Magnetfeldeffekts nicht möglich war. Deshalb wurden die Messungen an BK7 mit einer Anregungsspannung von 750 mV durchgeführt. Um den Einfluß des elektrischen Feldes auf die Magnetfeldabhängigkeit zu untersuchen, wurde eine weitere Messung bei der Temperatur des Wolfram-Fixpunktes mit

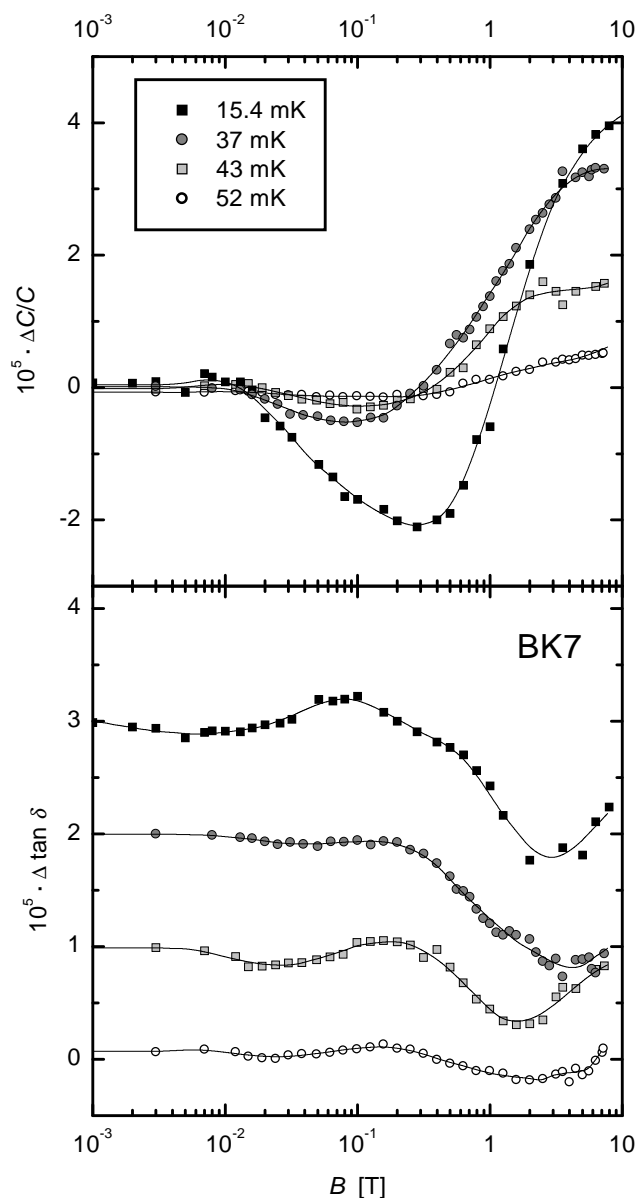


Bild 6.7: Magnetfeldabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung (oben) und der Änderung des Verlustwinkels (unten) von BK7 für verschiedenen Temperaturen. Die Anregungsspannung betrug 750 mV. Bei einer Temperatur von 15.4 mK wurde auf den Wolfram-Fixpunkt geregelt, andere Temperaturen wurden mit dem Kohlesensor geregelt und mit dem RuO₂-Thermometer gemessen. Zur besseren Darstellung sind die Meßdaten des Verlustwinkels jeweils um $1 \cdot 10^{-5}$ gegeneinander verschoben gezeichnet. Da die Messungen bei einem Temperaturwert an verschiedenen Tagen durchgeführt sind, gibt es bei Temperaturregelung auf den Kohlesensor leicht unterschiedliche Temperaturen (± 0.1 mK). Der Verlustwinkel ist besonders sensitiv auf Temperaturänderungen, deshalb war in den Meßdaten des Verlustwinkels ein Versatz zwischen Messungen verschiedener Tage sichtbar. Um dennoch den Magnetfeldeffekt am Verlustwinkel zeigen zu können, wurden die Messungen von verschiedenen Tagen bei den Temperaturen 37 mK und 43 mK gegeneinander verschoben.

einer Anregungsspannung von 3000 mV vorgenommen.

In Bild 6.8 ist diese Messung dargestellt, zum Vergleich ist zusätzlich eine Messung mit einer niedrigen Anregungsspannung eingezeichnet. Wie auch an BaO-Al₂O₃-SiO₂ gefunden wurde (siehe Bild 5.2), verursacht eine höhere Meßspannung zusätzliche Oszillationen. Doch im Gegensatz zu diesen Messungen wird durch eine Erhöhung der Anregungsspannung der Maximalhub der Kapazität durch das Magnetfeld nicht vergrößert. Vergleichbar mit den Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂, zeigt die Magnetfeldabhängigkeit des Verlustwinkels von BK7 keinen deutlichen Einfluß der Anregungsspannung.

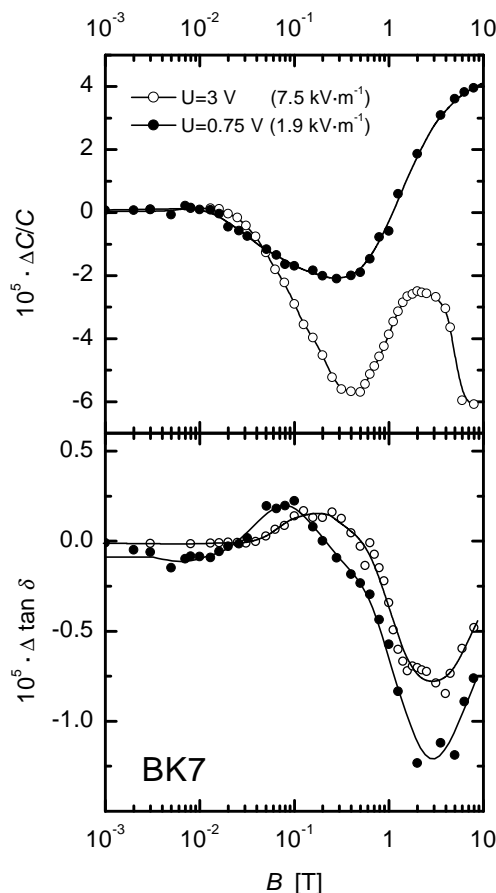


Bild 6.8: Magnetfeldabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung (oben) und der Änderung des Verlustwinkels (unten) von BK7 für Anregungsspannungen von 750 mV (●) bzw. 3000 mV (○). Dies entspricht elektrischen Feldern von 1875 V/m bzw. 7500 V/m. Die Temperatur wurde auf den Wolfram-Fixpunkt, $T_c = 15.4$ mK geregelt.

6.3 Diskussion der Ergebnisse

6.3.1 Einfluß des Magnetfelds auf die Thermometrie

Ein möglicher systematischer Fehler der Messungen im Magnetfeld kann der Einfluß des Restfeldes im kompensierten Bereich des Magneten (siehe Abschnitt 4.3) auf die Thermometrie sein. Wie in Bild 4.9 zu sehen ist, herrschen am Einbauort des Wolfram-Fixpunktes ($z \approx 200$ mm) axiale Restfelder bis 7 mT. Wenn der Fixpunkt gegen Magnetfelder ungeschirmt wäre, ergäbe sich eine Erniedrigung der Sprungtemperatur um $0.1 \text{ mK}/\mu\text{T}$ [Hec01].

Die Mumetall-Abschirmung des Wolfram-Fixpunktes (siehe Abschnitt 4.2.4) kann nur kleine Magnetfelder verkräften, da das Mumetall relativ schnell sättigt. Der supraleitende Niobschirm dämpft jedoch Magnetfelder in axialer Richtung effektiv. Nach [Gro76] ist die Schwächung eines äußeren axialen Feldes B_{ax}^0 durch einen supraleitenden Zylinder:

$$B_{\text{ax}} = B_{\text{ax}}^0 e^{-3.83z/r} + \dots, \quad (6.2)$$

mit dem Magnetfeld B_{ax} im Inneren, dem Radius des Schirms r und der axialen Koordinate vom Zylinderrand z . Man sieht, daß schon nach einem Radius ($r=10$ mm bei dem

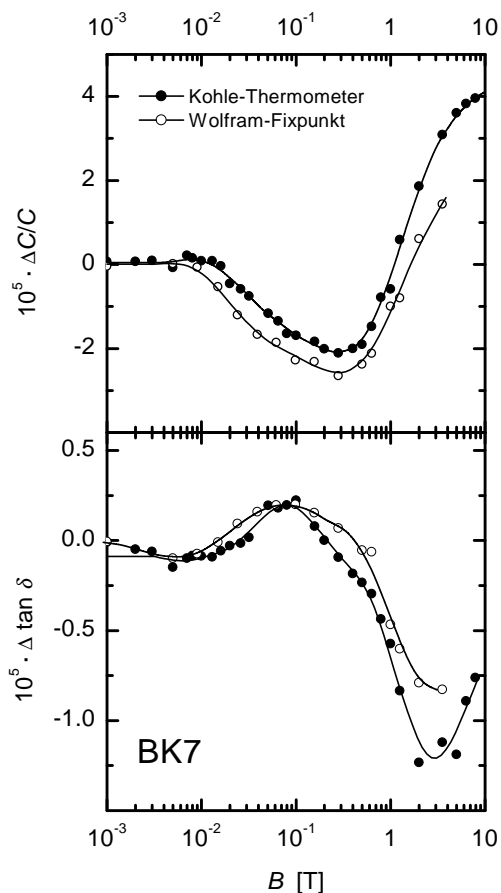


Bild 6.9: Relative Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels von BK7 im Magnetfeld. Die Temperatur wurde einerseits mit Hilfe des Wolfram-Fixpunktes ($T_c = 15.4$ mK, geschlossene Symbole), andererseits mit einem Kohlewiderstand ($T \approx 15$ mK, offene Symbole) geregelt.

eingebauten Fixpunkt) das Feld um den Faktor 0.01 geschwächt wird. Die Schirmung des Radialanteils äußerer Magnetfelder B_{rad}^0 ist hingegen ineffektiver [Gro76]:

$$B_{\text{rad}} = B_{\text{rad}}^0 e^{-1.84z/r} + \dots \quad (6.3)$$

Wie jedoch Bild 4.9 entnommen werden kann, ist der radiale Anteil des Streufeldes kleiner als 1 mT, so daß dieser den Sprungpunkt des Wolfram-Kristalls nicht beeinflussen dürfte.

Zur Überprüfung der Magnetfeldunabhängigkeit der Fixpunkt-Thermometrie wurde eine Messung mit Kohlethermometer-Regelung bis zu einem Magnetfeld von 4 T vorgenommen. Wie in Bild 6.9 zu sehen ist, sind die Meßwerte nahezu gleich. Durch den Magnetowiderstand können jedoch auch Kohlewiderstände einen relativen Temperaturfehler von bis zu 20 % bei 8 T aufweisen [Sam77]. Unter Annahme einer linearen Beziehung zwischen Magnetowiderstand und Magnetfeld kann der Temperaturfehler des Kohlesensors im Streufeld jedoch auf < 0.01 mK abgeschätzt werden. Somit kann ein Einfluß des Streufeldes auf die Thermometrie ausgeschlossen werden.

6.3.2 Einfluß der Fe³⁺-Verunreinigungen

Wie der Analyse in Tabelle 6.1 zu entnehmen ist, enthält BaO-Al₂O₃-SiO₂ Eisen-Verunreinigungen mit einer Konzentration von 102 ppm. Ein naheliegender Gedanke ist natürlich, daß der beobachtete Magnetfeldeffekt auf diese paramagnetischen Momente zurückzuführen ist, indem die Verunreinigungen magnetische Tunnelsysteme bilden.

Der sehr niedrige Gehalt an Eisenionen in BK7 war – wie schon erwähnt – ein Hauptgrund, dielektrische Messungen an diesem Material vorzunehmen. In Bild 6.10 sind Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ und BK7 zusammengefaßt, um den Effekt quantitativ vergleichen zu können.

Das wichtigste Ergebnis der Messungen an BK7 im Magnetfeld ist, daß es auch bei diesem Glas einen Magnetfeldeffekt gibt. Eisenverunreinigungen sind demnach *nicht* ursächlich für diesen Effekt. Dennoch gibt es quantitative und qualitative Unterschiede im Magnetfeldverhalten von BK7 und BaO-Al₂O₃-SiO₂. Der Magnetfeldeffekt in der Kapazität ist bei BaO-Al₂O₃-SiO₂ größer und setzt bei wesentlich niedrigeren Feldern ein. Ein Einfluß der Eisenverunreinigungen könnte demnach eine Verstärkung des Effekts sein.

Zur Klärung des Einflusses der Eisenionen wurde in der Arbeit von Siebert [Sie01] eine dielektrische Messung an einer Duranprobe¹ vorgenommen. Die chemische Zusammensetzung von Duran ist vergleichbar mit der Zusammensetzung von BK7 (siehe Tabelle 4.10). Im Gegensatz zu dem fast eisenfreien optischen Glas BK7 enthält Duran jedoch rund 130 ppm Fe³⁺-Verunreinigungen. Der Absolutwert der Eisenkonzentration variiert je nach Herstellungsprozeß und Form des Halbzeuges. In Tabelle 6.1 ist die Eisenkonzentration angegeben, die aus Gleichfeld-Suszeptibilitätsmessungen an Stangenmaterial erhalten wurde.

Bild 6.11 zeigt eine dielektrische Messung an einer Duranprobe im Vergleich zu einer Messung an BK7. Die Probe wurde nach dem selben Verfahren präpariert wie die BK7-Probe und in einen baugleichen Probenhalter eingebaut. Probenpräparation bzw. -halter sind in den Abschnitten 4.6.2.2 und 4.6.3 beschrieben.

Die Kapazität von Duran zeigt im Magnetfeld qualitativ ähnliches Verhalten wie BK7, die maximale Änderung durch das Magnetfeld ist allerdings kleiner. Genauere Aussagen lassen die Meßdaten nicht zu, da es sich hierbei noch um eine vorläufige Messung handelt. Eine Verstärkung des Magnetfeldeffekts durch Eisenionen kann nach dieser Vergleichsmessung jedoch ausgeschlossen werden.

Neben dielektrischen Messungen gibt es noch weitere Indizien für die Unabhängigkeit des Magnetfeldeffekts von Eisenverunreinigungen. In der Dissertation von Siebert [Sie01] wurde die spezifische Wärme von BaO-Al₂O₃-SiO₂, BK7 und Duran im Magnetfeld bis 8 T und bei Temperaturen bis unter 300 mK untersucht. Der Einfluß der magnetischen Beimengungen auf die spezifische Wärme konnte in allen Magnetfeldern durch ein rein paramagnetisches Verhalten nach Gleichung (3.25) beschrieben werden. Einen direkten

¹Duran ist ein technisches Borosilikatglas von Schott Glaswerke [Sch81].

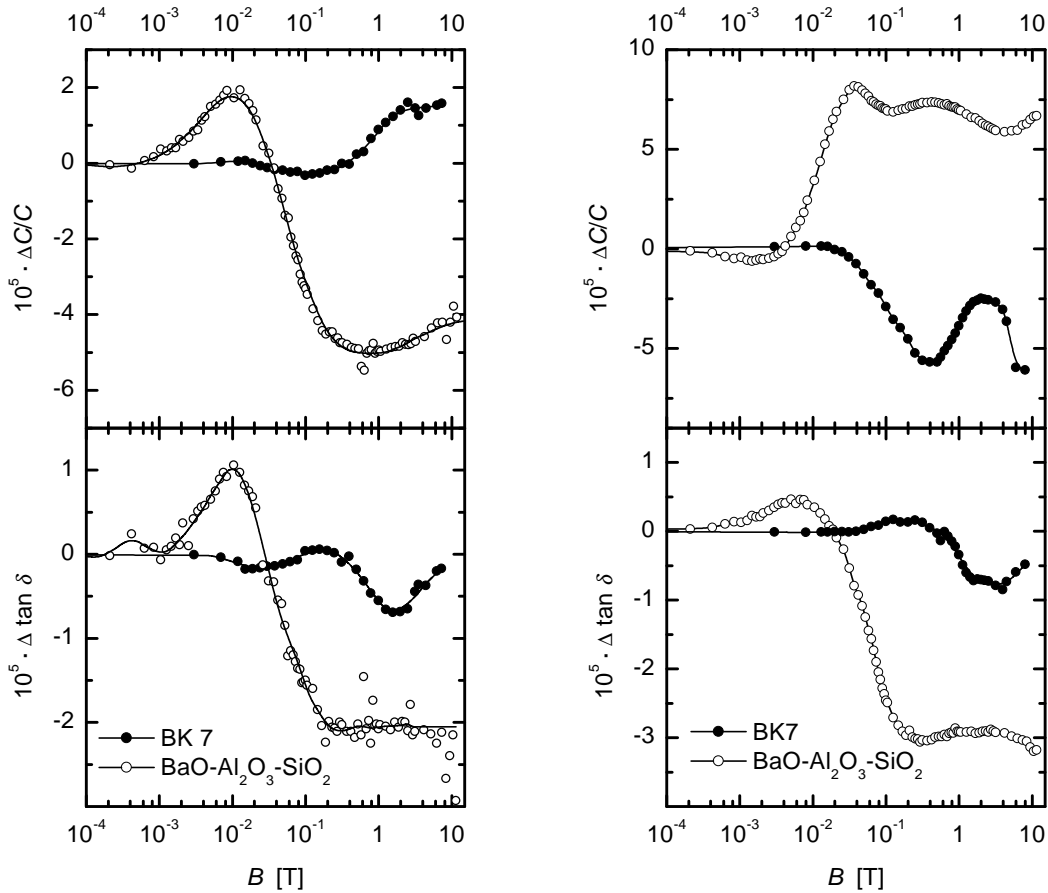
(a) niedrige Spannung, $\mathcal{E} \approx 1 \text{ kV/m}$ (b) hohe Spannung, $\mathcal{E} \approx 10 \text{ kV/m}$.

Bild 6.10: Vergleich des Magnetfeldeffekt bei BK7 (geschlossene Symbole) und $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ (offene Symbole, [Hau01]). Die Messungen in (a) wurden bei einer Temperatur von 43 mK (BK7) bzw. 50 mK durchgeführt, die Messungen in (b) bei einer Temperatur von 15.4 mK (BK7) bzw. 24 mK. Eine Erhöhung der Anregungsspannung hat auf beide Proben demzufolge den gleichen Effekt. Es entstehen neue, oszillatorische Ausprägungen. Der Magnetfeldeffekt im Verlustwinkel wird bei beiden Gläsern durch die Anregungsspannung kaum beeinflusst.

Beweis des ideal paramagnetischen Verhaltens wurde bei Untersuchungen der magnetischen Suszeptibilität zwischen 20 mK und 150 mK an Duran gefunden. Das Ergebnis der Untersuchungen der spezifischen Wärme und magnetischen Suszeptibilität ist, daß zwischen den Fe^{3+} -Spins und Tunnelzustandssystemen keine Wechselwirkungen vorhanden sind.

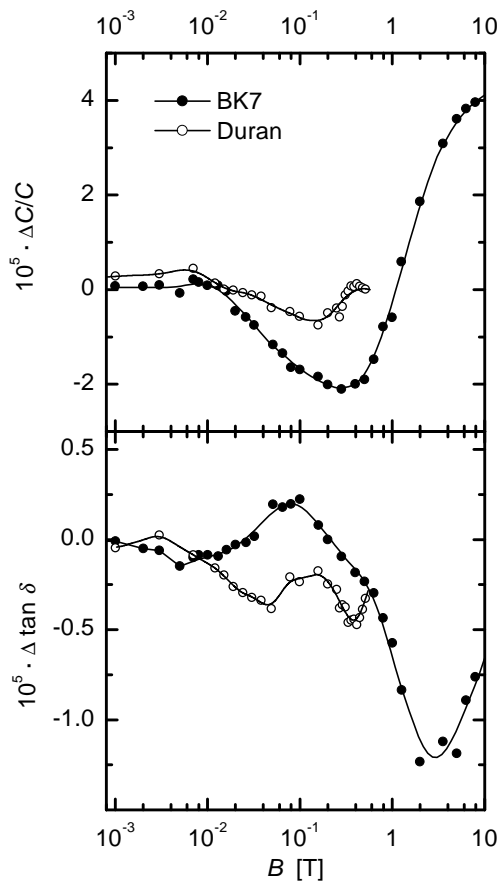


Bild 6.11: Magnetfeldabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung (oben) und der Änderung des Verlustwinkels (unten) für BK7 (●) und einer vorläufigen Messung an Duran (○) [Sie01]. Die Messungen wurden mit einer Anregungsspannung von 750 mV, entsprechend einem elektrischen Feld von 1875 V/m und mit Temperaturregelung auf den Wolfram-Fixpunkt ($T_c=15.4$ mK) durchgeführt.

6.3.3 Zusammenfassung der Ergebnisse der BK7-Messungen

Die an BK7 durchgeführten dielektrischen Messungen im Magnetfeld lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Auch bei BK7 konnte eine Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Eigenschaften beobachtet werden. Der gefundene Magnetfeldeffekt ist demnach keine spezielle Eigenart des Glases $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$, sondern könnte eine universelle Eigenschaft von Gläsern mit Dipolmoment sein.
- Die gefundene Abhängigkeit ist ebenfalls nichtmonoton.
- Bei BK7 kann ebenso durch Erhöhung der Anregungsspannung eine Variation des Magnetfeldeffektes beobachtet werden.
- Ein Meßartefakt durch Probenpräparation und Größe des Dickfilmsensors kann ausgeschlossen werden.
- Durch Vergleichsmessung an Duran kann eine Verstärkung des Magnetfeldeffekts durch Eisenverunreinigungen ausgeschlossen werden.

6.4 Spekulationen

Eine Beschreibung des detaillierten Verlaufs der dielektrischen Funktion im Magnetfeld kann aufgrund der komplizierten Abhängigkeiten von Magnetfeldern, elektrischen Feldern, magnetischen Beimengungen und der chemischen Zusammensetzung nicht geleistet werden. Dennoch soll hier ein Szenario gezeichnet werden, wie eine – von der Thermodynamik nicht vorhergesagte – Magnetfeldabhängigkeit vorstellbar ist.

Eine Wechselwirkung mit Magnetfeldern erfordert die Anwesenheit von magnetischen Dipolmomenten im Material. Paramagnetische Beimengungen sind nach obigen Ausführungen nicht ursächlich für den Effekt und nukleare magnetische Momente tragen in dem untersuchten Temperaturbereich bei Magnetfeldern unterhalb von 1 T nicht bei. Es kann sich also nur noch um den Bahnmagnetismus sich bewegender geladener Teilchen handeln.

Die Dynamik in Gläsern unterhalb von 1 K wird fast ausschließlich von Tunnelzustandssystemen bestimmt. Im eindimensionalen Standardtunnelmodell stellen Tunnelssysteme mit Dipolmoment sich bewegende geladene Teilchen dar. Um ein magnetisches Moment zu erhalten, muß die Bewegung eine Fläche einschließen. Eine Möglichkeit wäre es, das Doppelmuldenpotential des Standardtunnelmodells auf einer Kreisbahn anzuordnen, wie es von Kettemann et al. vorgeschlagen wurde (siehe Abschnitt 3.3.1). Durch die Tunnelbewegung in der „Hutkrempe“ des Sombropotentials wird die Energieaufspaltung des Tunnelzustandssystems flußperiodisch, siehe Gleichung (3.105). Auch zeitlich veränderliche elektrische Felder können Flußeffekte verursachen [Ola85, Str01b].

In einer linearen Näherung kann der resonante Teil der dielektrischen Antwort berechnet werden. Die Magnetfeldabhängigkeit renormalisiert sich in der minimalen Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$, die jetzt ebenfalls flußperiodisch wird: $t_{\min}(\Phi) = \Delta_{0,\min} \cos(\pi\Phi/\Phi_0)$, Gleichung (3.106). Durch Änderung des Magnetfeldes kann demzufolge die effektive minimale Tunnelaufspaltung verkleinert werden, dadurch steigt die Kapazität an. Da der Einfluß von $\Delta_{0,\min}$ auf die Kapazität mit abnehmender Temperatur stärker wird (siehe z. B. Bild 5.9), erklärt dies die stärkere Ausprägung des Magnetfeldeffekts mit sinkender Temperatur.

Dieses einfache Szenario trägt noch weiter. Wenn im Glas intrinsische magnetische Momente enthalten sind, dann erzeugen diese ein mittleres inneres Feld. Dieses Feld bewirkt ebenfalls magnetische Flußeffekte und damit eine kleinere effektive minimale Tunnelaufspaltung. Durch ein äußeres Feld kann dieses innere Feld aufgebrochen werden, und die effektive minimale Tunnelaufspaltung würde steigen. Dies hätte zur Folge, daß die Kapazität bei Erhöhung des Magnetfeldes zuerst sinken würde, wie es z. B. bei BK7 in Bild 6.7 und bei BaO-Al₂O₃-SiO₂ in Bild 6.5 beobachtet wurde.

Um die Größenordnung des Effekts zu überschlagen, kann anhand der Periode der Oszillationen das Flußquantum (3.104) abgeschätzt werden. Aus dem Magnetfeldwert des Maximums bei BK7, $B_{\max} \approx 10$ T erhält man mit einem Radius $r \approx 2 \cdot 10^{-10}$ m eine Ladung des tunnelnden Teilchens von $Q \approx 4000 |e|$. Diese große Ladung kann nur durch eine kollektive Bewegung vieler Tunnelzustandssysteme erklärt werden. Über magneti-

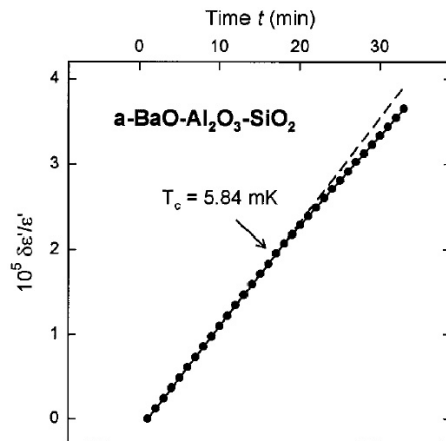


Bild 6.12: Zeitliche Änderung der elektrischen Permittivität von BaO-Al₂O₃-SiO₂ bei einer konstanten Kühlrate von 62.6 μK/min. Unterhalb der Temperatur $T_c=5.84$ mK weichen die Meßwerte von der durch Extrapolation von höheren Temperaturen erhaltenen Geraden ab. Bei dieser Messung wurde kein zusätzliches magnetisches Feld angelegt, am Ort der Probe waren vom Erdfeld noch rund 10 μT vorhanden. Aus [Str98].

sche Dipol/Dipol-Wechselwirkung kann die Wechselwirkung zwischen Tunnelzustandssystemen vermittelt werden.

Kollektive Bewegungen einer solch großen Anzahl von Tunnelzustandssystemen finden auf einer mesoskopischen Skala statt. Mit abnehmender Temperatur wird die Anzahl der kohärenten Tunnelzustandssysteme zunehmend größer. Dadurch wird der Magnetfeldeffekt in tieferen Temperaturen immer ausgeprägter. Wird eine bestimmte Temperatur unterschritten, könnte die Kohärenzlänge ausreichen, um kollektives Tunneln auf makroskopischer Skala zu ermöglichen. Einen Hinweis darauf bietet eine Messung der Kapazität von BaO-Al₂O₃-SiO₂ bei einer konstanten Kühlrate [Str98], siehe Bild 6.12. Die Steigung der Kurve ändert sich bei der Temperatur $T_c = 5.84$ mK abrupt, was auf einen Phasenübergang hinweisen könnte.

Bei den ersten Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂ von Strehlow et al. wurden Abhängigkeiten auf Magnetfelder von 20 μT (siehe Bild 2.2.2) gefunden. Die Tunnelssysteme reagieren bei ultratiefen Temperaturen also auf Felder in der Größenordnung von Bruchteilen des Erdmagnetfeldes. Solche kleinen Felder können durch intrinsische magnetische Momente (Kernmomente oder elektronische Momente) oder Streufelder aus der Umgebung hervorgerufen werden. Durch elektrische Flußeffekte gibt es zusätzlich eine Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von inneren fluktuierenden elektrischen Feldern und äußeren Wechselfeldern. Dies könnte die beobachtete Abhängigkeit von der Anregungsspannung (Bild 6.8) erklären.

Aufgrund dieser vielfältigen Abhängigkeiten wird man nicht erwarten, die komplizierten Verläufe wie in Bild 6.4 erklären zu können.

Um bei zukünftigen Untersuchungen eine quantitative Beschreibung zu ermöglichen, ist zuerst ein Modell zur Beschreibung der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften im Magnetfeld erforderlich. Dieses wird auf Modellen von wechselwirkenden Tunnelzustandssystemen basieren (siehe z. B. [Bur98]). Zusätzlich müssen Annahmen über die Ladungsverteilung der Tunnelssysteme eingebracht werden. Zur experimentellen Untersuchung wäre ein Glas mit intrinsischem Dipolmoment, wenigen Komponenten, definierter Zusammensetzung und vernachlässigbarem Anteil an magnetischen Momenten besser ge-

eignet. Ebenso vielversprechend könnten dielektrische Experimente im Magnetfeld an Defektkristallen sein.

6.5 Vergleich mit Messungen anderer Autoren

Die in der Vergangenheit durchgeführten niederfrequenten dielektrischen Tieftemperaturmessungen an Gläsern im Magnetfeld wurden meist im Rahmen der Erforschung von Tieftemperaturthermometern vorgenommen. In Abschnitt 2.2.1 sind die Ergebnisse der Untersuchungen zusammengefaßt.

In neuerer Zeit wurden jedoch, angeregt durch den Nachweis der Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Funktion von $\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$, akustische Messungen im Magnetfeld durchgeführt. Nach den Ausführungen in Abschnitt 3.2.4.3 stehen akustische und dielektrische Messungen in enger Analogie zueinander. Da die Tunnelzustandssysteme mit Dipolmoment eine Untermenge aller Tunnelzustandssysteme bilden, sollten Magnetfeldeffekte auch bei akustischen Experimenten vorhanden sein.

Bisher wurden akustische Messungen ausschließlich an sog. *Double Paddle*-Oszillatoren [Whi95] durchgeführt. Dabei handelt es sich um einen speziell für akustische Untersuchungen entwickelten Oszillator, der im Vergleich zu *vibrating reed*- oder *vibrating wire*-Oszillatoren eine reduzierte Untergrunddämpfung aufweist. Zudem bietet das Paddle verschiedene Schwingungsmoden, dies erlaubt die Untersuchung der elastischen Eigenschaften bei verschiedenen Frequenzen und Polarisierungen.

Diese Meßmethode wurde erfolgreich bei der Untersuchung der akustischen Tieftemperatureigenschaften verschiedenster amorpher Substanzen im Nullfeld verwendet, z. B. Kieselglas [Cla00a, Cla00b], BK7 [Lay00], Fs21 [Lay00] und amorphem Silizium und Germanium [Liu98].

Layer et al. [Lay01, Lay00] untersuchten die relative Schallgeschwindigkeitsänderung und innere Reibung von BK7 im Magnetfeld bis 200 mT (siehe Bild 6.13). Dabei konnte kein signifikanter Einfluß des Magnetfeldes auf die Schallgeschwindigkeit festgestellt werden.

Die innere Reibung hingegen zeigte eine Magnetfeldabhängigkeit, die allerdings durch die Wirbelstromdämpfung des Oszillators im Magnetfeld erklärt werden kann. Durch die Bewegung des Oszillators im äußeren Feld ergeben sich Änderungen des magnetischen Flusses, die einen Wirbelstrom in der Metallschicht induzieren. Dieser Strom erfährt im Magnetfeld eine Lorentzkraft, die den Oszillator hemmen und somit die Dämpfung erhöhen. In Bild 6.13(b) kann die daraus resultierende quadratische Magnetfeldabhängigkeit der inneren Reibung erkannt werden. Zudem wurde bei Messungen an einer symmetrischen Torsionsmode, bei der die Bewegung senkrecht zum Magnetfeld erfolgt und somit der Oszillator keine Wirbelstromdämpfung erfahren sollte, keine Magnetfeldabhängigkeit der inneren Reibung gefunden.

Auch bei anderen Materialien, z. B. Fs21 [Lay01], AF45 [Lay00], und amorphem Silizium [Met99] wurde kein Einfluß des Magnetfeldes auf die akustischen Eigenschaften

gesehen.

Aktuelle dielektrische Messungen an BaO-Al₂O₃-SiO₂-Glas im Magnetfeld wurden von Ludwig et al. [Lud01] mit der Methode des dielektrischen Zweipuls-Echos vorgenommen. Bei dieser Meßmethode werden mit Hilfe eines gepulsten hochfrequenten elektrischen Wechselfeldes direkt die Zweiniveausysteme angeregt. Die dielektrische Antwort wird durch einen zweiten Puls als Echo detektierbar gemacht. Einen Überblick über die Meßmethode und den verwendeten Versuchsaufbau gibt [Lud00].

Messungen wurden an einer scheibenförmigen Glasprobe mit einer Frequenz von 1055 MHz durchgeführt. Die Amplitude des dielektrischen Echos zeigte ebenfalls eine nichtmonotone Abhängigkeit vom Magnetfeld. Interessant ist die Abhängigkeit von der eingestrahlten Feldstärke, siehe Bild 6.14. Der Magnetfeldeffekt ist demnach bei dieser Temperatur und Frequenz stark von elektrischen Feldern abhängig. Dies bestätigt die an BaO-Al₂O₃-SiO₂ gefundene Verstärkung des Effekts mit zunehmender Anregungsspannung (siehe Bild 6.5).

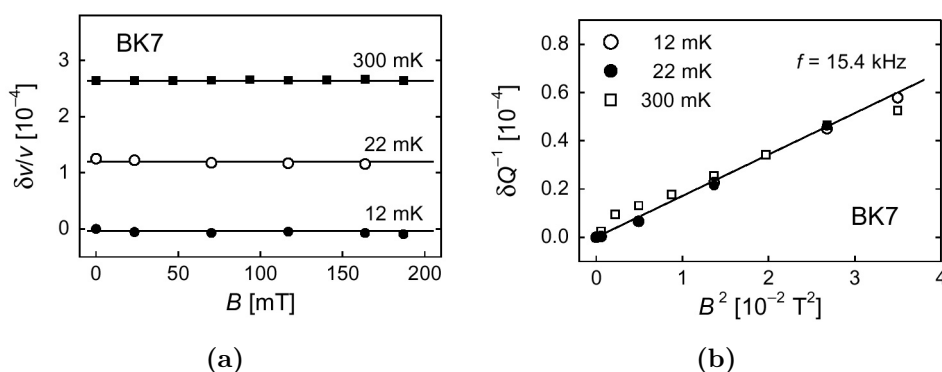


Bild 6.13: Akustische Messungen eines BK7-Paddles im Magnetfeld. (a) Relative Schallgeschwindigkeitsänderung. (b) innere Reibung, aufgetragen gegen das Quadrat des Magnetfelds. Aus [Lay01].

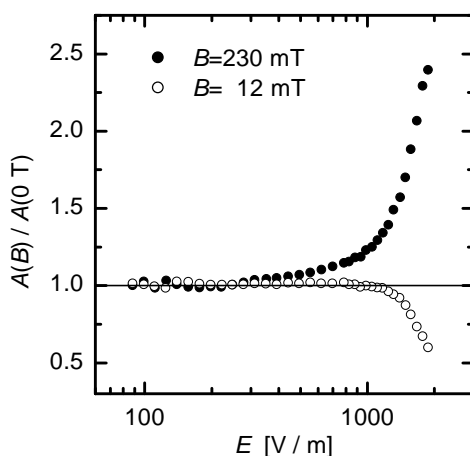


Bild 6.14: Abhängigkeit der relativen Echoamplitude von BaO-Al₂O₃-SiO₂-Glas im Magnetfeld. Referenzwert ist der Amplitudenwert im Nullfeld. Die Messung wurde mit der Zweipuls-Echomethode bei einer Frequenz von 1055 MHz und einer Temperatur von 12 mK durchgeführt. Nach [Lud01].

7 Zusammenfassung

In der thermodynamischen Materialtheorie isotroper Dielektrika im elektromagnetischen Feld läßt sich allgemein eine quadratische Abhängigkeit der elektrischen Permittivität vom Magnetfeld ableiten. In linearer Beschreibung ist dann keine Magnetfeldabhängigkeit zu erwarten. Demgegenüber zeigten Messungen an Bariumalumosilikatglas von Strehlow et al. bei ultratiefen Temperaturen in kleinsten Magnetfeldern eine unerwartete Magnetfeldabhängigkeit der elektrischen Permittivität.

In der vorliegenden Arbeit wurden Untersuchungen der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Mehrkomponentengläsern, Bariumalumosilikatglas ($\text{BaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$) und BK7, im Magnetfeld vorgenommen. Da Messungen dieser Art äußerst empfindlich gegen hochfrequente Einstrahlungen sind, wurde ein Kryostat benötigt, der eine äußere Schirmung besitzt. Zu diesem Zweck stand an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt der sich im Aufbau befindliche Kryostat MKA 3 zur Verfügung. Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Gashandlingsystem des Kryostaten fertiggestellt, Thermometrie und Datenerfassung aufgebaut und der MKA 3 als Verdünnungskryostat in Betrieb genommen. Zur Erzeugung des Magnetfeldes wurde das zweistufige Magnetsystem eingebaut und in Betrieb genommen. Dazu mußten angepaßte Strahlungsschilde und ein neuer Vakuumtopf konstruiert werden.

Da sich die Anlage über drei Stockwerke erstreckt, ist ein Fernbedienungsbetrieb unerläßlich. Zu diesem Zweck mußte das Programm zur Steuerung des Gashandlingsystems in großen Teilen neu geschrieben werden. Ebenso wurde ein Programm zur Datenaufnahme der Meßgeräte und zur Steuerung des Magneten entwickelt. Für dielektrische Tieftemperaturmessungen an scheibenförmigen Glasproben wurde ein kompakter Probenhalter konstruiert. Weitere Experimente im Magnetfeld konnten an einem resistiven Magneten im Hochfeldmagnetlabor Grenoble und in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Weiß, Technische Universität Karlsruhe durchgeführt werden.

Dielektrische Messungen an Bariumalumosilikatglas im Nullfeld bestätigten das bei anderen Gläsern gefundene Tieftemperaturverhalten. Zusätzlich konnten an Bariumalumosilikatglas dielektrische Langzeit-Relaxationen nachgewiesen werden, die bisher nur an BK7, Mylar und Kieselglas beobachtet wurden. Diese Relaxationen nach Anlegen eines hohen elektrischen Gleichfeldes können im Rahmen des Standardtunnelmodells beschrieben werden.

Durch Nullfeld-Messungen an BK7 konnte verifiziert werden, daß Probenhalter und -präparation präzise Messungen der dielektrischen Funktion bis zu einer Temperatur von 8 mK ermöglichen. Die Temperaturabhängigkeit von Kapazität und Verlustwinkel

wurde unterhalb von 300 mK gemessen und an das Standardtunnelmodell angepaßt. Dabei mußte eine minimale Tunnelaufspaltung von 3 mK bis 5 mK angenommen werden.

Die an Bariumalumosilikatglas gefundene Magnetfeldabhängigkeit der elektrischen Permittivität konnte bestätigt und auch bei höheren Temperaturen bis rund 500 mK nachgewiesen werden. In Magnetfeldern bis 24 T zeigen Kapazität und Verlustwinkel nichtmonotones, oszillatorisches Verhalten. Der Magnetfeldeffekt wird mit abnehmender Temperatur ausgeprägter. Zusätzlich kann durch Erhöhen der Anregungsspannung der Effekt verstärkt und zusätzliche Oszillationen in der Kapazität hervorgerufen werden. Durch Messungen in verschiedenen Kryostaten können von Probenhalter und thermischer Ankopplung hervorgerufene Meßartefakte als Ursache für den Magnetfeldeffekt ausgeschlossen werden.

Um den hohen Gehalt an Eisenverunreinigungen (102 ppm Fe^{3+}) und den Herstellungsprozeß des Bariumalumosilikatglas-Dickfilmsensors als Grund für den Magnetfeldeffekt auszuschließen, wurden weitere Messungen an dem optischen Standardglas BK7 vorgenommen. Auch bei diesem nahezu eisenfreien Glas (< 6 ppm Fe^{3+}) ist eine Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Funktion sichtbar. Der Effekt ist wiederum nichtmonoton, in Widerspruch zu den Vorhersagen der Thermodynamik. Bei diesem Glas wird die Magnetfeldabhängigkeit ebenfalls mit sinkender Temperatur stärker, und durch Erhöhen der Anregungsspannung können zusätzliche Oszillationen der Kapazität erzeugt werden. Insgesamt ist der Effekt bei BK7 jedoch schwächer ausgeprägt.

Eine Verstärkung des Effekts durch die paramagnetischen Verunreinigungen kann jedoch ausgeschlossen werden, dies zeigen Experimente an dem chemisch ähnlich zusammengesetzten, jedoch wesentlich mehr Eisenverunreinigungen (126 ppm Fe^{3+}) enthaltenden Geräteglas Duran. Messungen der dielektrischen Funktion von Duran zeigen eine dem BK7 vergleichbare Magnetfeldabhängigkeit.

Zur Deutung dieser unerwarteten Abhängigkeit von magnetischen und elektrischen Feldern wird ein dreidimensionales Tunnelmodell vorgeschlagen. Das Tunnelzustandssystem wird als Bewegung auf einer geschlossenen Bahn interpretiert. Eine Änderung des eingeschlossenen magnetischen Flusses führt zu einer Variation der Energieaufspaltung. Durch kollektives Tunneln auf einer mesoskopischen Skala werden diese Flußeffekte meßbar. Bei tiefen Temperaturen könnte es einen Übergang zu Tunneln auf makroskopischer Skala geben, der sich als Phasenübergang bemerkbar machen würde.

Bisher wurden die dielektrischen Eigenschaften von Gläsern als magnetfeldunabhängig angesehen. Dadurch fand dieses Material als tieftemperaturtaugliches Thermometer Verwendung. Durch die in dieser Arbeit nachgewiesene Magnetfeldabhängigkeit der elektrischen Permittivität wird diese Anwendung in Frage gestellt. Ebenso ist eine Neuinterpretation von früheren Messungen an Gläsern im Magnetfeld nötig. Bei ultratiefen Temperaturen machen sich selbst Magnetfelder in der Größenordnung von Bruchteilen des Erdmagnetfelds bemerkbar, deshalb sollten bisherige Messungen im „Nullfeld“ überprüft werden.

Die Untersuchungen der dielektrischen Eigenschaften in magnetischen und elektrischen Feldern bieten neue Möglichkeiten, die Dynamik und Wechselwirkungen von Tun-

nelzustandssystemen mit Dipolmoment zu untersuchen. Durch die interessanten und bisher noch unverstandenen Magnetfeldabhängigkeiten der dielektrischen Eigenschaften sind neue Impulse in der Untersuchung der Tieftemperatureigenschaften von Gläsern zu erwarten.

Literaturverzeichnis

- [Abr61] A. Abragam, in *The Principles of Nuclear Magnetism*, N. F. Mott, E. C. Bullard und D. H. Wilkinson (Eds.), Oxford University Press, London, (1961).
- [Aha59] Y. Aharonov und D. Bohm, *Phys. Rev.* **115** (1959), 485–491.
- [And72] P. W. Anderson, B. I. Halperin und C. M. Varma, *Philos. Mag.* **25** (1972), 1–9.
- [And94] Andeen-Hagerling, Inc., *AH 2500A 1 kHz Ultra-Precision Capacitance Bridge – Operation and Maintenance Manual*, Cleveland, Ohio, U.S.A., (1994).
- [Ang76] C. A. Angell und J. Wong, *Glass – Structure by Spectroscopy*, Dekker, New York, NY, USA, (1976).
- [Aro87] A. G. Aronov und Yu. V. Sharvin, *Rev. Mod. Phys.* **59** (1987), 755–779.
- [Bak72] D. Bakalyar, R. Swinehart, W. Weyhmann und W. N. Lawless, *Rev. Sci. Instrum.* **43** (1972), 1221–1223.
- [Bec90] C. Bechinger, *Dielektrische Messungen an Silikatgläsern bei Temperaturen unter 1 K*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, (1990).
- [Blo46] F. Bloch, *Phys. Rev.* **70** (1946), 460–474.
- [Bol74] L. Boltzmann, *Sitzb. der k. Akad. d. Wissensch., Wien* **70** (1874), 275–306.
- [Bra70] R. A. Brand, S. A. Letzring und W. W. Webb, *Tech. Report 1372*, The Materials Science Center, Cornell Univ., Ithaca, N.Y., (1970).
- [Buc57] A. D. Buckingham, *Proc. Phys. Soc.* **LXX** (1957), 753–760.
- [Buc84] U. Buchenau, N. Nücker und A. J. Dianoux, *Phys. Rev. Lett.* **53** (1984), 2316–2319.
- [Bur95] A. L. Burin, *J. Low Temp. Phys.* **100** (1995), 309–339.
- [Bur98] A. L. Burin, D. Natelson, D. D. Osheroff und Y. Kagan, in *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, P. Esquinazi (Ed.), Springer-Verlag, Berlin, (1998), 223–315.

- [Bur99] T. Burkert, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, (1999).
- [Car94] H. Carruzzo, E. R. Grannan und C. C. Yu, Phys. Rev. B **50** (1994), 6685–6695.
- [Cla94] J. Classen, C. Enss, C. Bechinger und G. Weiss, Ann. Phys. **3** (1994), 315–335.
- [Cla99] Johannes Classen, persönliche Mitteilung, (1999).
- [Cla00a] J. Classen, T. Burkert, C. Enss und S. Hunklinger, Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 2176–2179.
- [Cla00b] J. Classen, T. Burkert, C. Enss und S. Hunklinger, zur Veröffentlichung vorgesehen in Adv. Sol. State Phys. (2000).
- [Cry89] CryoVac Gesellschaft für Tieftemperaturtechnik mbH und Co. KG, Troisdorf, *Instruction Manual DRI 550 Dilution Refrigerator Insert*, (1989).
- [Eng99] J. Engert, persönliche Mitteilung, (1999).
- [Ens89] C. Enss, C. Bechinger und M. von Schickfus, in *Phonons 89*, S. Hunklinger, W. Ludwig und G. Weiss (Eds.), World Scientific, Singapur, (1989), 474.
- [Ens97] C. Enss, M. Gaukler, M. Nullmeier und R. Weis, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 370–373.
- [Ens00] C. Enss und S. Hunklinger, *Tieftemperaturphysik*, Springer, Heidelberg, (2000).
- [Esq92] P. Esquinazi, R. König und F. Pobell, Z. Phys. B **87** (1992), 305–321.
- [Esq98] P. Esquinazi, *Tunneling systems in amorphous and crystalline solids*, Springer, Berlin, (1998).
- [Frö49] H. Fröhlich, *Theory of Dielectrics – Dielectric Constant and Dielectric Loss*, Clarendon, Oxford, (1949).
- [Fro77a] G. Frossati, J. Gilchrist, H. Godfrinand und D. Thoulouze, Proc. of ULT Hakone Symposium (1977), 312.
- [Fro77b] G. Frossati, J. Le G. Gilchrist, J. C. Lasjaunias und W. Meyer, J. Phys. C: Solid State Phys. **10** (1977), L515–L519.
- [Fro80] G. Frossati, J. de Physique **41** (1980), 95–108.
- [Gol73] B. Golding, J. E. Graebner, B. I. Halperin und R. J. Schutz, Phys. Rev. Lett. **30** (1973), 223–226.
- [Gre00] Grenoble High Magnetic Field Laboratory, *Magnet M10*, 25, avenue des Martyrs, 38042 Grenoble, France, (2000), <http://GHMFL.polycnrs-gre.fr>.

-
- [Gro76] K. Grohmann, H. D. Hahlbohm, D. Hechtfisher und H. Lübbig, *Cryogenics* **16** (1976), 423–429.
- [Hau01] R. Haueisen, G. Weiss und P. Strehlow, zur Veröffentlichung vorgesehen, (2001).
- [Hec87] D. Hechtfisher, *Cryogenics* **27** (1987), 503–504.
- [Hec01] D. Hechtfisher, persönliche Mitteilung, (2001).
- [Her94] Heraeus Quarzglas GmbH, Hanau, *Quarzglas für die Optik – Daten und Eigenschaften*, (1994).
- [Her00a] T. Herrmannsdörfer und R. König, *J. Low Temp. Phys.* **118** (2000), 45–57.
- [Her00b] W. C. Heraeus GmbH – Produktbereich Dickfilm, Hanau, *Datenblatt PC870007G Silber-Leitpaste*, (2000).
- [Her01] T. Herrmannsdörfer, persönliche Mitteilung, (2001).
- [Höh91] R. Höhler, J. Münzel, G. Kasper und S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* **43** (1991), 9220–9227.
- [Hun72] S. Hunklinger, W. Arnold, St. Stein, R. Nava und K. Dransfeld, *Physics Letters A* **42** (1972), 253–255.
- [Hun76a] S. Hunklinger und W. Arnold, in *Physical Acoustics – Principles and Methods*, vol. 12, W. P. Mason und R. N. Thurston (Eds.), Academic Press, New York, USA, (1976), 155–214.
- [Hun76b] S. Hunklinger, H. Sussner und K. Dransfeld, in *New dynamic aspects of amorphous dielectric solids*, vol. 16, J. Treusch (Ed.), Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig, (1976), 267–291.
- [Ich82] K. Ichikawa, K. Fujioka, T. Kodama, T. Shigi, M. Yoshitake, K. Takiguchi und S. Ogawa, *Proc. ICEC9* (Guildford, UK) (Prof. Yasukochi und Prof. Nagano, eds.), Butterworth, May 1982, pp. 590–592.
- [Jäc72] J. Jäckle, *Z. Physik* **257** (1972), 212–223.
- [Jäc76] J. Jäckle, L. Piché, W. Arnold und S. Hunklinger, *J. Non Cryst. Solids* **20** (1976), 365–391.
- [Ket99] S. Kettemann, P. Fulde und P. Strehlow, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999), 4325–4328.
- [Kle78] M. W. Klein, B. Fischer, A. C. Anderson und P. J. Anthony, *Phys. Rev. B* **18** (1978), 5887–5891.

- [Kro38] R. Kronig, Z. Techn. Phys. **19** (1938), 509.
- [Küh01] M. Kühne, zur Veröffentlichung vorgesehen in Phys. Bl. (2001).
- [Lak99] Lake Shore Cryotronics, Inc., *Temperature Measurement and Control*, Lakeshore Cryotronics, Inc., Westerville, Ohio, USA, (1999), <http://www.lakeshore.com>.
- [Las78] J. C. Lasjaunias, R. Maynard und M. Vandorpe, J. de Physique **39** (1978), 973–975.
- [Law71a] W. N. Lawless, Rev. Sci. Instrum. **42** (1971), 561–566.
- [Law71b] W. N. Lawless, R. Radebaugh und R. J. Soulen, Rev. Sci. Instrum. **42** (1971), 567–570.
- [Lay00] M. Layer, *Untersuchung der elastischen Eigenschaften von Multikomponentengläsern bei tiefen Temperaturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, (2000).
- [Lay01] M. Layer, M. Heitz, J. Classen, C. Enss und S. Hunklinger, zur Veröffentlichung vorgesehen in J. Low Temp. Phys. (2001).
- [Leg87] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg und W. Zwerger, Rev. Mod. Phys. **59** (1987), 1.
- [Lin70] H. C. Lin und W. R. Foster, J. Amer. Ceram. Soc. **53** (1970), 549.
- [Liu98] Xiao Liu und R. O. Pohl, Phys. Rev. B **58** (1998), 9067–9081.
- [Lud00] S. Ludwig, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg, (2000).
- [Lud01] S. Ludwig, R. Weis, C. Enss und S. Hunklinger, zur Veröffentlichung vorgesehen, (2001).
- [Mai93] M. Maior, S. B. Molnar, Yu. M. Vysochanskii, M. I. Gurzan, P. H. M. van Loosdrecht, P. J. E. M. van der Linden und H. van Kempen, Appl. Phys. Lett. **62** (1993), 2646–2648.
- [Mak69] V. I. Makhan'kov, I. S. Sidorenko und G. P. Shemonaev, Cryogenics **9** (1969), 285.
- [Met99] T. H. Metcalf, Xiao Liu und R. O. Pohl, Phys. Rev. B **61** (1999), 9902–9905.
- [Mül85] I. Müller, *Thermodynamics*, Pitman Advanced Publishing Program, (1985).
- [Nau83] M. J. Naughton, S. Dickinson, R. C. Samaratinga, J. S. Brooks und K. P. Martin, Rev. Sci. Instrum. **54** (1983), 1529–1533.

-
- [Neu94] P. Neu und A. Würger, *Europhys. Lett.* **27** (1994), 457–462.
- [Ola85] S. Olariu und I. Iovitzu Popescu, *Rev. Mod. Phys.* **57** (1985), 339–433.
- [Osh96] D. Osheroff, S. Rogge und D. Natelson, *Czechoslovak J. Phys.* **46** (1996), 3295–3302.
- [Pen94] F. Penning, Ph.D. thesis, University of Nijmegen, Nijmegen, The Netherlands, (1994).
- [Pen95] F. C. Penning, M. M. Maior, P. Strehlow, S. A. J. Wieggers, H. Van Kempen und J. C. Maan, *Physica B* **211** (1995), 363–365.
- [Pen96] F. C. Penning, M. M. Maior, S. A. J. Wieggers, H. van Kempen und J. C. Maan, *Rev. Sci. Instrum.* **67** (1996), 2602–2605.
- [Phi72] W. A. Phillips, *J. Low Temp. Phys.* **7** (1972), 351–360.
- [Phi81] W. A. Phillips, *Amorphous Solids: Low-Temperature Properties*, “*Topics in Current Physics*”, vol. 24, Springer, Berlin, (1981).
- [Phi87] W. A. Phillips, *Rep. Prog. Phys.* **50** (1987), 1657–1708.
- [Pob96] Frank Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, Heidelberg, Springer-Verlag, (1996).
- [Rau95] S. Rau, C. Enss, S. Hunklinger, P. Neu und A. Würger, *Phys. Rev. B* **52** (1995), 7179–7194.
- [Rei86] P. J. Reijntjes, W. Van Rijswijk, G. A. Vermeulen und G. Frossati, *Rev. Sci. Instrum.* **57** (1986), 1413–1415.
- [Rog96] S. Rogge, D. Natelson und D. D. Osheroff, *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996), 3136–3139.
- [Rog97] S. Rogge, D. Natelson, B. Tigner und D. D. Osheroff, *Phys. Rev. B* **55** (1997), 11256–11262.
- [Rub71] L. G. Rubin und W. N. Lawless, *Rev. Sci. Instrum.* **42** (1971), 571–573.
- [Sal94] D. J. Salvino, S. Rogge, B. Tigner und D. D. Osheroff, *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994), 268–271.
- [Sam77] H. H. Sample und L. G. Rubin, *Cryogenics* **17** (1977), 597–606.
- [Sch58] K. Schilling, 2. Int. Koll. der Hochschule für Elektrotechnik, Illmenau (1958), 101.

- [Sch75] M. Von Schickfus, S. Hunklinger und L. Piche, *Phys. Rev. Lett.* **35** (1975), 876–878.
- [Sch81] Schott Glaswerke, Mainz, *Technische Gläser*, (1981).
- [Sch82] J. F. Schooley und R. J. Soulen, Jr, in *Superconductive Thermometric Fixed Points*, Temperature, its Measurement and Control in Science and Industry, American Institute of Physics, (1982), 251–260.
- [Sch93] F. Schwabl, *Quantenmechanik*, 4. Auflage, Springer, Heidelberg, (1993).
- [Sch96] Schott Glaswerke, Mainz, *Katalog Optisches Glas*, (1996).
- [Sch00] Schott Glaswerke, Mainz, *Gefahrenblatt BK7 und Gefahrenblatt N-BK7*, (2000).
- [Sie85] Siemens AG, München, *Handbuch HF-geschirmte Kabinen*, (1985).
- [Sie01] L. Siebert, Dissertation, Universität Heidelberg, (2001).
- [Spa74] S. Spauszus, *Werkstoffkunde Glas*, VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, (1974).
- [Sto74] R. L. Stoll, *The analysis of eddy currents*, Clarendon, Oxford, (1974).
- [Sto95] J. T. Stockburger, M. Grifoni und M. Sasseti, *Phys. Rev. B* **51** (1995), 2835–2843.
- [Str88] P. Strehlow, H. Schmidt und M. Birkham, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **121** (1988), 791–796.
- [Str90a] P. Strehlow, *J. Non Cryst. Solids* **121** (1990), 463–464.
- [Str90b] P. Strehlow, *Physica B* **165–166** (1990), 25–26.
- [Str92] P. Strehlow und P. Zitzmann, *Temperature* **6** (1992), 1219–1224.
- [Str94] P. Strehlow, *Cryogenics* **34** (1994), 421–424.
- [Str96] P. Strehlow, C. Enss und S. Hunklinger, *Proc. LT21 und Czech. J. Phys.* **46** (1996), 2231–2232.
- [Str97] P. Strehlow, Habilitation, Technische Universität Berlin, (1997).
- [Str98] P. Strehlow, C. Enss und S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998), 5361–5364.
- [Str00] P. Strehlow, M. Wohlfahrt, A. G. M. Jansen, R. Haueisen, G. Weiss, C. Enss und S. Hunklinger, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 1938–1941.

-
- [Str01a] P. Strehlow, persönliche Mitteilung, (2001).
- [Str01b] P. Strehlow, Zur Veröffentlichung vorgesehen, (2001).
- [Stu83] R. V. Stuart, *Vacuum Technology, Thin Films, and Sputtering*, Academic Press, New York, (1983).
- [Tru60] C. Truesdell, in *The Classical Field Theories*, “*Handbuch der Physik*”, vol. III/1, S. Flügge (Ed.), Springer, Berlin, (1960).
- [Tru65] C. Truesdell und W. Noll, in *The Non-Linear Field Theories of Mechanics*, “*Handbuch der Physik*”, vol. III/3, S. Flügge (Ed.), Springer-Verlag, Berlin, (1965).
- [Vac75] Vacuumschmelze GmbH, Hanau, *Magnetische Abschirmungen und Firmenblatt M037*, (1975).
- [vC94] J. E. van Cleve, A. K. Raychaudhuri und R. O. Pohl, *Z. Phys. B* **93** (1994), 479–490.
- [vR98] R. van Rooijen, A. Marchenkov, H. Akimoto und R. Jochemsen, *J. Low Temp. Phys.* **110** (1998), 269–274.
- [Web91] A. Weber, Ph.D. thesis, Universität Heidelberg, (1991).
- [Whi95] B. E. White, Jr und R. O. Pohl, in *Thin Films: Stresses and Mechanical Properties V. Symposium*, S. P. Baker and C. A. Ross and P. H. Townsend and C. A. Volkert and P. Borgesen ed., Mater. Res. Soc., Pittsburgh, PA, USA, (1995), 567–572.
- [Wie87] S. A. J. Wieggers, R. Jochemsen, C. C. Kranenburg und G. Frossati, *Rev. Sci. Instrum.* **58** (1987), 2274–2278.
- [Win00] Mark Winter, *WebElements Periodic Table of the Elements*, WebElements Ltd. and The University of Sheffield, (12.12.2000), <http://www.webelements.com>.
- [Wol96] Wolfram Research, Inc., *Mathematica 3.0*, (1996), <http://www.wolfram.com>.
- [Wür98] A. Würger, in *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, P. Esquinazi (Ed.), Springer, Berlin, (1998), 57–143.
- [Yu88] C. C. Yu und A. J. Leggett, *Comm. Cond. Mat. Phys.* **14** (1988), 231–251.
- [Zar91] J. Zarzycki, *Glasses and the vitreous state*, University Press, Cambridge, (1991).
- [Zel71] R. C. Zeller und R. O. Pohl, *Phys. Rev. B* **4** (1971), 2029–2041.

Ein herzliches Dankeschön...

... allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beitrugen:

- Herrn Prof. Dr. S. Hunklinger für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Möglichkeit, dieses spannende, neue Arbeitsgebiet zu bearbeiten. Sein reges Interesse am Fortgang der Arbeit und seine Unterstützung trugen maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit bei. Zudem ermöglichte er die Messungen in Grenoble.
- Herrn Prof. Dr. P. Fulde für die Finanzierung meiner Arbeit und sein Interesse an den neuen Erkenntnissen der dielektrischen Tieftemperatureigenschaften von Gläsern.
- Herrn Priv.-Doz. Dr. P. Strehlow für die intensive Betreuung an der PTB und seine ständige Bereitschaft zur Diskussion.
- Herrn Priv.-Doz. Dr. R. Kühn für seine Bereitschaft zur Erstellung des Zweitgutachtens und wertvolle Diskussionen.
- Herrn Priv.-Doz. Dr. C. Enss für das rege Interesse an den Experimenten und seine Diskussionsbereitschaft.
- Prof. Dr. Weiss und Ralf Haueisen von der TU Karlsruhe für die gute Zusammenarbeit und die Durchführung der Messungen an der BaO-Al₂O₃-SiO₂-Probe.
- Louis Jansen und Peter van der Linden vom Hochfeldmagnetlabor Grenoble für die tatkräftige Unterstützung während der Meßzeit am M10.
- Herrn Wolf und Herrn Schultheiß vom Kirchhoff-Institut für Physik für die unermüdlichen Arbeiten bei der Beschichtung der Proben.
- Dr. Hoffmann und Dr. Hechtfisher vom MK 2 für wertvolle Tips und kollegiale Hilfen.
- Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt der PTB, insbesondere Herrn Blume, Herrn Blenklein, Herrn Schwericke, Matthias Körber und Bettina Schipke für die stets schnelle und gute Arbeit. Danke gebührt auch Herrn Bossenmaier für die Läparbeiten.
- Den Mitarbeitern der Schlosserei der PTB, insbesondere Herrn Marquadt, für die schnellen und präzisen Schweißarbeiten an der MKA 3.
- Den Mitarbeitern der Elektro- und Betriebswerkstatt für einige Umbauarbeiten im Umfeld der MKA 3.

- Den Mitarbeitern der Kältetechnik, Herrn Kuhfeld, Herrn Klaukin und Herrn Blank für die Versorgung an flüssigem Helium und Stickstoff.
- Den Mitarbeitern im Labor: Dieter Mrozek, Sebastian Bronkalla und Klaus-Dieter „Klausi“ Adrian für die Mitarbeit an der MKA 3 und die gute Arbeitsatmosphäre.
- Meinem Mitstreiter Lars Siebert für die stets freundschaftliche Zusammenarbeit im Kampf mit den Tücken der Technik und Bürokratie. Für die gute Atmosphäre nicht nur während vieler gemeinsamer Arbeitsstunden und Nachtschichten sondern auch in der Freizeit sei ihm herzlich gedankt.
- Meinem Freund Dr. Sven Visbeck für die „transatlantische“ kritische und sorgfältige Durchsicht der Arbeit und viele gemeinsame erholsame Freizeitstunden in Berlin.
- Meinen Eltern für die stets wohlwollende Unterstützung während meines Studiums und meiner Dissertation.
- ... und nicht zuletzt meiner Freundin Anke, für die liebe Zuneigung und Geduld während des Zusammenschreibens.