



Michel Kinzer

Untersuchung der dielektrischen Funktion
von Gläsern bei sehr tiefen Temperaturen

Diplomarbeit

Oktober 2008

Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

DIPLOMARBEIT
im Studiengang Physik

vorgelegt von

Michel Kinzer

aus Freiburg im Breisgau

2008

Untersuchung der dielektrischen Funktion von Gläsern bei sehr tiefen Temperaturen

Die Diplomarbeit wurde ausgeführt von Michel Kinzer am
Kirchhoff-Institut für Physik
unter der Betreuung von
Herrn Prof. Dr. C. Enss

Die Tieftemperatureigenschaften amorpher Systeme werden durch das Tunnelmodell beschrieben. Dieses Modell ist in der Lage qualitative und quantitative Voraussagen verschiedener Messgrößen zu treffen. Allerdings wurden in einigen Experimenten auch Abweichungen vom Tunnelmodell gefunden. Im Falle von Messungen von elektrischen Polarisationsechos werden diese Abweichungen durch Einflüsse von Kernmomenten beschrieben. Um diese Erklärung auf andere Messgrößen zu erweitern, wurden in der vorliegenden Arbeit Messungen der dielektrischen Eigenschaften an den Multikomponentengläsern BK7 und N-KZFS11 bei sehr tiefen Temperaturen durchgeführt und diese auf Einflüsse von Kernmomenten untersucht. Die Voraussagen des Tunnelmodells konnten in vielen Punkten bestätigt werden. Eine schwache thermische Ankopplung der Probe sowie Wärmeeinträge aufgrund der Messleitungen verhinderten zunächst Messungen bei Temperaturen unterhalb von 30 mK. Um dieses Problem zu lösen, wurde zusätzlich ein neuer Versuchsaufbau mit einer deutlich stärkeren thermischen Ankopplung der Probe entwickelt.

Measurements of dielectric properties of glasses at very low temperatures

The properties of amorphous systems at very low temperatures are described by the tunneling model. Within this model many low temperature properties of glasses can be predicted. Despite of this success in some measurements shortcomings of the tunneling model were observed. In case of polarization echos, these deviations are well described by nuclear moments. In order to adopt this explanation for other quantities further investigations have to be carried out. In this thesis the dielectric properties of two multicomponent glasses BK7 and N-KZFS11 have been investigated at very low temperatures. The predictions of the tunneling model have been confirmed in various aspects. The insufficient thermal coupling of the sample as well as residual heat flow due to the electrical conductors prevented measurements at temperatures below 30 mK. A new setup has been developed to overcome these problems.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens amorpher Festkörper	3
2.1	Tieftemperaturanomalien amorpher Festkörper	3
2.2	Das Tunnelmodell	6
2.2.1	Das Doppelmuldenpotential	7
2.2.2	Verteilungsfunktion der Parameter	10
2.2.3	Wechselwirkung mit elektrischen Feldern	11
2.2.4	Wechselwirkung mit Phononen	13
2.2.5	Relaxationsprozesse	14
2.2.6	Resonante Prozesse	17
2.2.7	Integration und Näherung der Beiträge	18
2.3	Abweichungen vom Tunnelmodell	20
2.4	Auswirkungen von magnetischen Feldern auf die dielektrische Funktion	21
2.4.1	Einfluss magnetischer und elektrischer Kernmomente	23
2.4.2	Übertragen des Kernquadrupolmodells auf dielektrische Eigenschaften	25
2.4.3	Effekte eines externen magnetischen Feldes	27
3	Experimentelle Methoden	29
3.1	Erzeugung und Messung tiefer Temperaturen	29
3.2	Versuchsaufbau	29
3.2.1	Aufbau der Kapazität	29

3.2.2	Aufbau des Probenhalters	31
3.3	Erzeugung magnetischer Felder	33
3.4	Proben	34
3.5	Messung der dielektrischen Funktion	35
3.5.1	Die Meßgrößen	35
3.5.2	Erfassung der Messdaten	36
3.6	Experimentelle Probleme	37
3.6.1	Thermische Isolation der Probe	38
3.6.2	Dissipative Prozesse in der Probe	39
3.6.3	Wärmeeinträge aufgrund von Wirbelströmen	39
4	Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	41
4.1	Messung an BK7	42
4.1.1	Messungen im Nullfeld	42
4.1.2	Vergleich mit Messungen anderer Autoren	47
4.2	Messung an N-KZFS11	50
4.3	Thermalisierung der Glasprobe	54
4.4	Messung der dielektrischen Funktion mittels einer mikrostrukturierten Glasprobe	59
4.4.1	Design des Kammes	61
4.4.2	Aufbau des Probenhalters	62
4.4.3	Thermalisierung der Glasprobe	62
5	Zusammenfassung und Ausblick	67
	Literaturverzeichnis	69
	Danksagung	73

1. Einleitung

Die Untersuchung von kondensierter Materie ist seit langer Zeit fester Bestandteil der aktuellen Forschung. Neben Eigenschaften, die durch die atomare oder molekulare Zusammensetzung bestimmt werden, ist auch die mikroskopische Struktur des Festkörpers für das physikalische Verhalten maßgeblich bestimmend. Bezüglich ihres strukturellen Aufbaus werden Festkörper in zwei Klassen unterteilt, welche sich deutlich in ihrer theoretischen Beschreibung unterscheiden.

Eine dieser Klassen sind die Kristalle, deren Atome oder Moleküle in gleichbleibenden Struktureinheiten periodisch angeordnet sind. Ein idealer Kristall weist somit eine perfekte Fernordnung auf, er kann aber durchaus anisotrop sein. Die Annahme eines translationsinvarianten Kontinuums ermöglicht die Beschreibung des gesamten Festkörpers durch nur eine periodisch wiederkehrende Struktureinheit, was die mathematische Behandlung des Systems sehr erleichtert.

Die andere Klasse sind die amorphen Festkörper. Die Anordnung ihrer Atome und Moleküle zeichnet sich durch die Abwesenheit einer Fernordnung aus. Aus diesem Grund kann die theoretische Beschreibung der geordneten Festkörper im Allgemeinen nicht auf amorphe Systeme übertragen werden.

Erstmals wurde durch Zeller und Pohl im Jahre 1971 gezeigt, dass sich die Eigenschaften von amorphen und kristallinen Festkörpern bei tiefen Temperaturen stark unterscheiden. Dieses Resultat war sehr überraschend, da angenommen wurde, dass die Tieftemperatureigenschaften der Festkörper durch langwellige Phononen dominiert werden. Diese würden nicht von den Strukturunregelmäßigkeiten der amorphen Festkörper beeinflusst.

Ein Vergleich der spezifischen Wärme sowie der Wärmeleitfähigkeit von kristallinen und amorphen Festkörpern [Zel71] zeigte überraschenderweise ein deutlich abweichendes Verhalten der beiden Stoffklassen. Im Gegensatz zur erwarteten kubischen Temperaturabhängigkeit der beiden Größen, wurden bei Temperaturen unterhalb von 1 K im Fall der spezifischen Wärme eine lineare und im Fall der Wärmeleitfähigkeit eine quadratische Abhängigkeit gemessen. Dies war der Startpunkt von weiteren systematischen Untersuchungen verschiedener Größen an unterschiedlichen Gläsern, welche ein abweichendes Verhalten geordneter von ungeordneter Festkörper bestätigten.

Der erfolgreichste Ansatz, die Eigenschaften amorpher Festkörper bei sehr tiefen Temperaturen zu beschreiben, ist das Tunnelmodell. Dieses Modell postuliert niederenergetische Anregungen in Form von Teilchen, welche in der Potentiallandschaft des Festkörpers verschiedene Positionen einnehmen können. Die Besonderheit hierbei ist der Mechanismus, welcher den Teilchen die Möglichkeit gibt, ihre Position zu wechseln. Im Vergleich zu Temperaturen über 10 K, bei denen die Überwindung von Potentialbarrieren von thermisch aktivierten Prozessen dominiert wird, finden Platzwechsel bei tiefen Temperaturen durch Tunnelprozesse statt. Die für den Tunnelprozess wichtigen Parameter ergeben sich

aus der mikroskopischen Struktur des Festkörpers. Da amorphe Materialien mit verschiedenen Bindungslängen und -winkel betrachtet werden, ist es leicht einzusehen, dass die Parameter einer breiten Verteilung folgen müssen.

Mit diesen Annahmen ist das Tunnelmodell in der Lage Ergebnisse aus akustischen und dielektrischen Experimenten sowie Untersuchungen der spezifischen Wärme und der Wärmeleitfähigkeit erfolgreich vorherzusagen. Bislang bleiben jedoch einige Fragen offen. Es konnte beispielsweise bis zum heutigen Zeitpunkt nicht eindeutig geklärt werden, welche und wieviele Teilchen an einer Tunnelbewegung beteiligt sind. Desweiteren liefern Messungen der dielektrischen und akustischen Eigenschaften ungefähr 20 Jahre nach der Veröffentlichung des Tunnelmodells systematische Abweichungen unterhalb von 100 mK von der Vorhersage [CE89, Esq92]. Um diese Abweichungen zu erklären, existieren theoretische Ansätze, welche von einer Wechselwirkungen der Tunnelsysteme untereinander ausgehen.

Eine weitere, für diese Arbeit wichtige Abweichung, war im Jahre 1998 die Entdeckung einer Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von externen magnetischen Feldern. Diese Feststellung war völlig unerwartet, da man davon ausging, dass Eigenschaften dielektrischer Gläser ohne magnetische Störstellen unabhängig von magnetischen Feldern sind. Aus thermodynamischen Überlegungen lässt sich schließen, dass die dielektrische Funktion höchstens eine quadratische Abhängigkeit von magnetischen Feldern aufweist [Woh01]. Die Messung der relativen Kapazitätsänderung von Glasthermometern mit einem Dielektrikum aus Spectrosil ist in Feldern bis zu 6 T unabhängig vom Magnetfeld [Rei86], weshalb die beobachtete Abhängigkeit von magnetischen Feldern im Mikrottesla-Bereich sehr überraschend ist.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Einfluss von magnetischen Feldern auf die dielektrische Funktion zu untersuchen und anhand verschiedener Proben nach einem Zusammenhang zu Kernmomenten zu suchen. Hierzu liefert Kapitel 2 die Beschreibung und Voraussagen der dielektrischen Temperatureigenschaften nach dem Tunnelmodell. Zusätzlich werden Erweiterungen diskutiert, welche die Abhängigkeit von magnetischen Feldern erklären können. Kapitel 3 widmet sich dem experimentellen Aufbau, den verwendeten Proben, der Aufnahme der Messdaten sowie den experimentellen Problemen, die im Laufe der Arbeit aufgetreten sind. In Kapitel 4 werden die Ergebnisse aus den durchgeführten Messungen vorgestellt und diskutiert, bis die vorliegende Arbeit in Kapitel 5 durch eine Zusammenfassung und einen Ausblick für zukünftige Messungen beschlossen wird.

2. Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens amorpher Festkörper

2.1 Tieftemperaturanomalien amorpher Festkörper

Amorphe Festkörper besitzen im Unterschied zu kristallinen Festkörpern keine Fernordnung, was bedeutet, dass es keine festen Bindungslängen und Bindungswinkel zwischen den Atomen und Molekülen gibt und somit kein langreichweitiges periodisches Gitter existiert. Die Abwesenheit eines regelmäßigen Gitters bewirkt fundamentale Unterschiede einer Vielzahl von Eigenschaften von Gläsern im Vergleich zu Kristallen bei tiefen Temperaturen. Einige davon sollen hier vorgestellt werden.

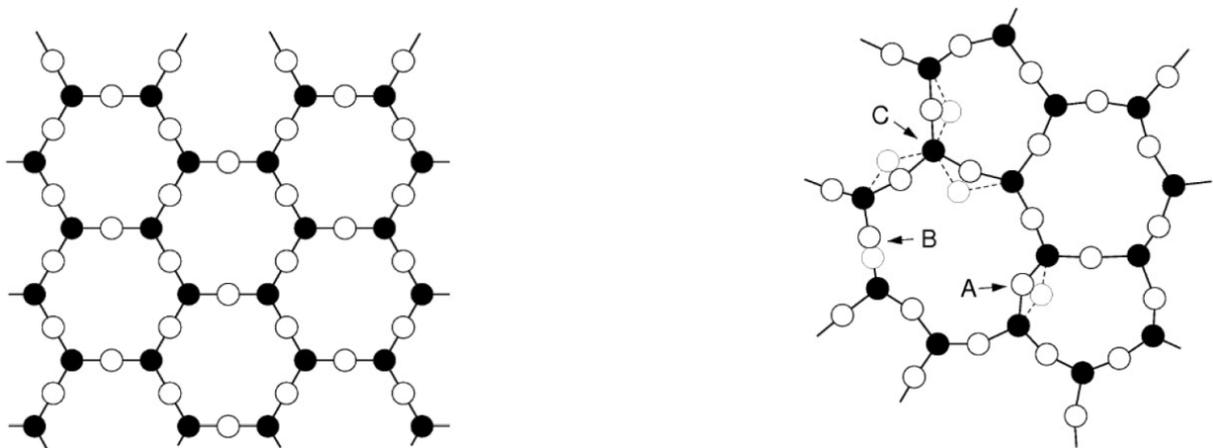


Abb. 2.1: Schematische Darstellung der strukturellen Unterschiede von kristallinen (**links**) und amorphen Festkörpern (**rechts**). Die kristalline Struktur zeigt eine perfekte Nah- und Fernordnung der Atome, die amorphe Struktur weist beispielsweise an den Stellen A, B und C klare Abweichungen von der idealen Gitterstruktur auf.

Spezifische Wärme

Die spezifische Wärme von dielektrischen Kristallen wird erfolgreich durch das Debye-Modell wiedergegeben [Deb12a]. In diesem Modell wird der Festkörper als ein isotropes und homogenes Medium beschrieben, in welchem Phononen eine charakteristische Schallgeschwindigkeit besitzen. Die Debye-Theorie sagt voraus, dass die spezifische Wärme bei tiefen Temperaturen proportional zu T^3 ist.

In Abbildung 2.2 sind Messungen der spezifischen Wärme von kristallinem und amorphem Siliziumoxid aufgetragen. Die Messung des amorphen Materials zeigt bei Temperaturen

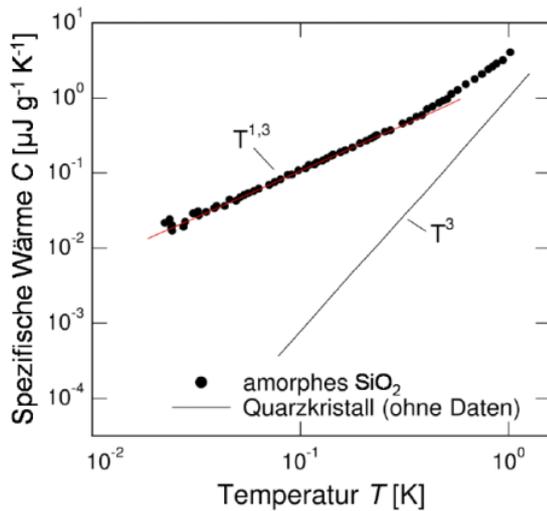


Abb. 2.2: Spezifische Wärme von kristallinem und amorphem SiO_2 als Funktion der Temperatur nach [Hun77]. Daten für den Kristall sind nicht eingezeichnet.

unter 100 mK einen um drei Größenordnungen höheren Wert als die des kristallinen. Weiterhin ergibt die Messung am amorphen Festkörper eine Abhängigkeit proportional zu $T^{1.3}$, im Widerspruch zur Voraussage des Debye-Modells.

Dieses Resultat war vor der Messung unerwartet, da der Beitrag der Phononen zur spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen durch langwellige Phononen bestimmt wird. Da die Wellenlänge der thermischen Phononen größer als typische Strukturunregelmäßigkeiten im Glas ist, sollte ihr Beitrag zur spezifischen Wärme unabhängig von der Ordnung des Systems sein.

Wärmeleitfähigkeit

In dielektrischen Kristallen erfolgt die Ausbreitung von Wärme mittels Gitterschwingungen. Aufgrund von Gitteranharmonizitäten und der Wechselwirkung von Phononen untereinander, breiten sich Phononen jedoch nicht ungestört aus, sondern erfahren Streuung. Betrachtet man den Wärmetransport als statistischen Prozess so erhält man aus der kinetischen Gastheorie für das Phononengas eine Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der Form $\lambda \propto Cv l$, wobei v die Schallgeschwindigkeit, C die spezifische Wärme und l die mittlere freie Weglänge des Phononengases bedeutet. Bei Untersuchungen der Wärmeleitfähigkeit von amorphem und kristallinem Quarz entdeckten Zeller und Pohl (siehe Abbildung 2.3) systematische Unterschiede zwischen den beiden Materialien [Zel71].

Die Messdaten für den Kristall durchlaufen von tiefen Temperaturen kommend ein Maximum und fallen zu hohen Temperaturen wieder ab. Bei tiefen Temperaturen ist die mittlere freie Weglänge der Phonon-Phonon-Streuung so groß, dass die freie Weglänge nur durch die Probengeometrie begrenzt wird. Mit einer in diesen Temperaturbereich nahezu konstanten Schallgeschwindigkeit ist die Wärmeleitung mit der spezifischen Wärme

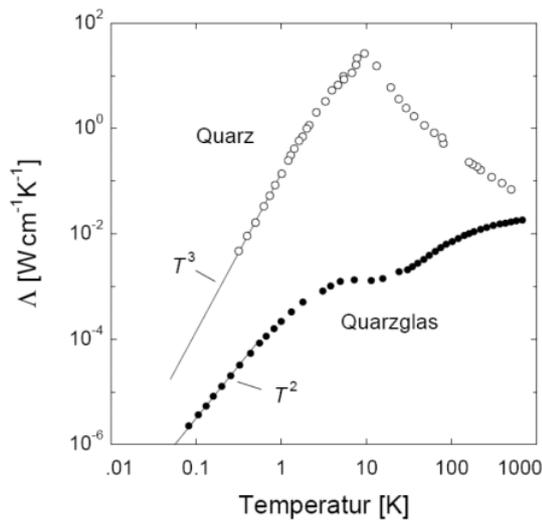


Abb. 2.3: Wärmeleitfähigkeit von kristallinem und amorphem Quarz aufgetragen gegen die Temperatur. Daten von [Zel71].

nach dem Debye-Modell proportional zu T^3 . Bei höheren Temperaturen wächst die Zahl der Phononen und damit die Streuung untereinander stark an, was sich in der Wärmeleitfähigkeit als exponentieller Abfall bemerkbar macht.

Die Daten für den amorphen Festkörper zeigen ein anderes Verhalten: Im gesamten Temperaturbereich ist die Wärmeleitfähigkeit des Glases um Größenordnungen kleiner als die des Kristalls. Ausgehend von tiefen Temperaturen beobachtet man einen Anstieg proportional zu T^2 , welcher in der Gegend des Maximums der Wärmeleitfähigkeit des Kristalls in ein Plateau mündet und bei höheren Temperaturen schließlich wieder ansteigt. Erklären kann man die quadratische Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit bei Temperaturen unter einem Kelvin dadurch, dass es einen weiteren, lokalisierten Streumechanismus geben muss, welcher verhindert, dass die mittlere freie Weglänge der Phononen einen nur von der Probengeometrie abhängigen konstanten Wert erreicht. Ist die mittlere freie Weglänge im Vergleich zum Kristall kleiner, so muss auch die Wärmeleitfähigkeit kleiner sein.

An dieser Stelle ist es wichtig zu erwähnen, dass die Abhängigkeit von der Temperatur und die Absolutbeträge der Wärmeleitfähigkeit, der spezifischen Wärme sowie anderer Messgrößen für unterschiedliche Gläser sehr ähnlich ist. Man spricht hierbei von der Universalität der Eigenschaften amorpher Festkörper bei tiefen Temperaturen.

Ultraschallabsorption

Einen ersten Hinweis auf die Existenz von Zwei-Niveau-Systemen in Gläsern konnte 1974 anhand von Ultraschallexperimenten erbracht werden [Hun74]. In Abbildung 2.4 ist die Absorption von Ultraschallwellen im Multikomponentenglas BK7 gegen die Intensität der Wellen aufgetragen. Die Absorption fällt mit steigender Intensität ab, bis sie schließlich verschwindet. Der Verlauf der Kurve kann erklärt werden, wenn die Ultraschallabsorption als resonante Wechselwirkung von Ultraschallwellen mit lokalisierten Zwei-Niveau-

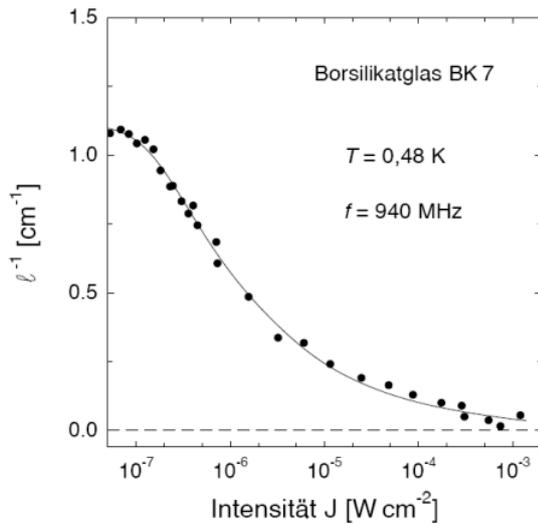


Abb. 2.4: Ultraschallabsorption aufgetragen gegen die Intensität der eingestrahnten Welle. Die durchgezogene Linie ist eine Voraussage nach [Hun74].

Systemen aufgefasst wird. Für die Besetzungszahldifferenz eines solchen Systems gilt

$$\Delta N = N \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right), \quad (2.1)$$

wobei E die Energieaufspaltung zwischen den beiden Niveaus beschreibt. Strahlt man eine Ultraschallwelle der Frequenz $\nu = E/h$ in das Glas ein, so werden resonante Übergänge zwischen den Niveaus induziert. Da sich bei kleinen Temperaturen ($k_{\text{B}}T \ll E$) der Großteil der Systeme im Grundzustand befindet, wird die Ultraschallwelle bei kleinen Intensitäten stark gedämpft. Erhöht man die Intensität, so werden immer mehr Systeme in das energetisch höhere Niveau gehoben und die Dämpfung nimmt ab. Erhöht man die Intensität weiter, strebt die Besetzungszahldifferenz gegen null, die resonante Absorption und die stimulierte Emission werden gleichwahrscheinlich und die Absorption verschwindet.

2.2 Das Tunnelmodell

Um das Tieftemperaturverhalten amorpher Festkörper zu beschreiben, wurde ein Modell vorgeschlagen, in dem sich die Atome im Glas in einer Potentiallandschaft bewegen können. Da bei tiefen Temperaturen die Überwindung einer Potentialbarriere aufgrund von thermischer Aktivierung an Bedeutung verliert, wird angenommen, dass die Teilchen zwischen den Potentialminima tunneln. Der Tunneleffekt ist in vielen Lehrbüchern der Quantenmechanik (zum Beispiel [CT07]) beschrieben.

2.2.1 Das Doppelmuldenpotential

Das Tunnelmodell ist ein phänomenologischer Ansatz und wurde 1972 unabhängig von Anderson *et al.* [And72] sowie Philips [Phi72] vorgeschlagen. Der Ansatz vereinfacht die Potentiallandschaft amorpher Festkörper durch die Annahme vieler Doppelmuldenpotentiale. Jedes dieser Potentiale ist durch zwei harmonische Teilpotentiale aufgebaut, zwischen denen Teilchen der effektiven Masse m tunneln können.

$$V(x) = \begin{cases} \gamma(x+l)^2 + \Delta & \text{für } x < 0 \\ \gamma(x-l)^2 & \text{für } x > 0 \end{cases} \quad (2.2)$$

In Abbildung 2.5 ist ein solches Doppelmuldenpotential gezeigt. Es ist charakterisiert durch die Parameter γ , die Steilheit der Potentialwände, $2l$, dem Abstand zwischen den beiden Minimas im Konfigurationsraum und Δ der Differenz der beiden Potentialminima. Im Tunnelmodell wird die Energiedifferenz Δ als Asymmetrieenergie bezeichnet. Die

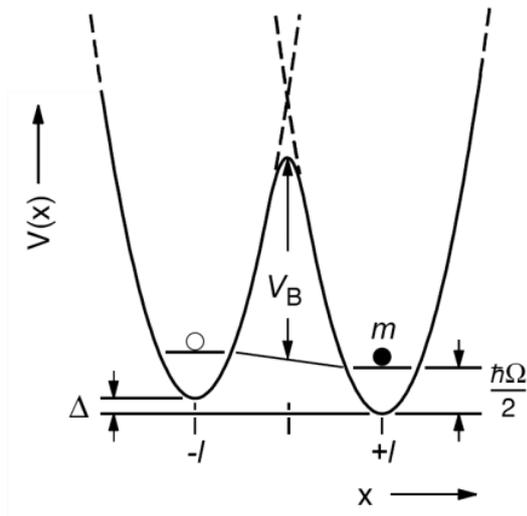


Abb. 2.5: Schematische Darstellung eines Teilchens der effektiven Masse m im Doppelmuldenpotential. Δ bezeichnet die Asymmetrieenergie, $\frac{\hbar\Omega}{2}$ die Grundzustandsenergie in den Teilpotentialen, V_B die Barrièrehöhe und $2l$ den Abstand der Potentialminima im Konfigurationsraum.

Bestimmung der Eigenwerte und der Zustandsfunktionen im Potential aus (2.2) ist ein Eigenwertproblem. Um dieses zu lösen, betrachten wir zunächst den ungestörten Fall. Es muss die zeitunabhängige Schrödingergleichung

$$H\psi(x) = E\psi(x) \quad (2.3)$$

mit dem Hamilton-Operator

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d}{dx^2} + V(x) \quad (2.4)$$

und dem Potential aus (2.2) betrachtet werden.

Die Lösung von (2.3) lässt sich wesentlich erleichtern, wenn man das Potential in seine zwei harmonischen Anteile ($l \rightarrow \infty$) zerlegt. In diesem Fall erhält man zwei Differentialgleichungen eines harmonischen Oszillators mit bekannten Grundzustandswellenfunktionen

$\psi_A(x)$ und $\psi_B(x)$ sowie Energieeigenwerten für die beiden Mulden.

Eine Annäherung der beiden Potentiale bewirkt eine Aufspaltung der Energieeigenwerte, da die Potentiale und Wellenfunktionen sich zu überlappen beginnen. Bei hinreichend großem l kann dennoch davon ausgegangen werden, dass der Lösungsraum von (2.3) durch die Wellenfunktionen $\psi_A(x)$ und $\psi_B(x)$ aufgespannt wird. Daher können wir die Wellenfunktion des Doppelmuldenpotentials beschreiben durch

$$\psi(x) = c_A \cdot \psi_A(x) + c_B \cdot \psi_B(x) \quad (2.5)$$

mit geeigneten Koeffizienten c_A und c_B . Unter Verwendung bekannter Materialeigenschaften kann man sich davon überzeugen, dass der Abstand der Energieniveaus in den einzelnen harmonischen Teilpotentialen vom Grundzustand zum ersten angeregten Zustand einige 10 K beträgt [Buc84], weshalb bei Tieftemperaturmessungen unterhalb von 1 K davon ausgegangen werden kann, dass nur der Grundzustand des harmonischen Potentials besetzt ist.

Die Grundzustandswellenfunktionen für die harmonischen Teilpotentiale lauten

$$\psi_A(x) = \left(\frac{\lambda}{\pi l^2} \right)^{1/4} e^{-\frac{\lambda}{2} \left(\frac{x}{l} + 1 \right)^2} \quad \text{und} \quad \psi_B = \left(\frac{\lambda}{\pi l^2} \right)^{1/4} e^{-\frac{\lambda}{2} \left(\frac{x}{l} - 1 \right)^2} \quad (2.6)$$

mit dem Tunnelparameter

$$\lambda = \frac{2\gamma l^2}{\hbar\Omega}. \quad (2.7)$$

Der Tunnelparameter λ kennzeichnet im wesentlichen den Überlapp der Wellenfunktionen ψ_A und ψ_B und entspricht ungefähr dem Verhältnis der Barrierenhöhe V_B und der Grundzustandsenergie $\frac{1}{2}\hbar\Omega$. Er hängt also stark von den für das Tunnelmodell relevanten Parametern des betrachteten Glases ab.

Der Ansatz (2.5) wird nun in (2.3) eingesetzt und von links mit einer der komplexkonjugierten Wellenfunktionen aus (2.6) multipliziert. Mit der Einstein'schen Summenkonvention lassen sich die Gleichungen schreiben als

$$c_i(H_{ji} - ED_{ji}) = 0, \quad (2.8)$$

wobei H_{ji} die Matrixelemente des Hamilton-Operators sind,

$$H_{ji} = \langle \psi_j | H | \psi_i \rangle, \quad (2.9)$$

und D die Überlappung der Wellenfunktionen angibt,

$$D_{ji} = \langle \psi_j | \psi_i \rangle. \quad (2.10)$$

Da die Wellenfunktionen ψ_i aus (2.6) bekannt sind, können die Integrationen ausgeführt werden und man erhält

$$D_{11} = D_{22} = 1 \quad \text{sowie} \quad D_{12} = D_{21} = e^{-\lambda} \quad (2.11)$$

$$H_{11} = \frac{\hbar\omega}{2} + \Delta \quad \text{sowie} \quad H_{22} = \frac{\hbar\omega}{2} \quad (2.12)$$

$$H_{12} = H_{21} = \frac{\hbar\omega}{2} e^{-\lambda} \left(1 - 2\sqrt{\frac{\lambda}{\pi}} \right) + \frac{\Delta}{2} e^{-\lambda}. \quad (2.13)$$

Diagonalisiert man diesen Hamiltonoperator, erhält man die Energieeigenwerte des Systems

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}(\hbar\Omega \pm \sqrt{\Delta^2 + (\Delta_0(\lambda))^2}). \quad (2.14)$$

Der Energienullpunkt wurde im letzten Schritt so gewählt, dass er in der Mitte zwischen den beiden Minimas des Doppelmuldenpotentials liegt.

Die Energieaufspaltung E der beiden Zustände ist durch (2.14) gegeben. Für sie gilt

$$E = E_+ - E_- = \sqrt{\Delta^2 + (\Delta_0(\lambda))^2}. \quad (2.15)$$

Die Größe Δ_0 nennt man die Tunnelaufspaltung, da sie die Energieaufspaltung der Eigenwerte für symmetrische Doppelmuldenpotentiale ($\Delta = 0$) angibt. Für sie gilt

$$\Delta_0 = -2\hbar\Omega \sqrt{\frac{\lambda}{\pi}} e^{-\lambda}. \quad (2.16)$$

Zu den Eigenwerten 2.14 erhält man die Wellenfunktionen

$$\psi_+(x) = \psi_A(x) \cos(\vartheta) + \psi_B(x) \sin(\vartheta) \quad (2.17a)$$

$$\psi_-(x) = -\psi_A(x) \sin(\vartheta) + \psi_B(x) \cos(\vartheta). \quad (2.17b)$$

mit $\tan 2\vartheta = \frac{\Delta_0}{\Delta}$. Die Wellenfunktion des Grundzustands ist stets durch die symmetrische Wellenfunktion ψ_+ gegeben. Beide Wellenfunktionen sind in Abbildung 2.6 skizziert.

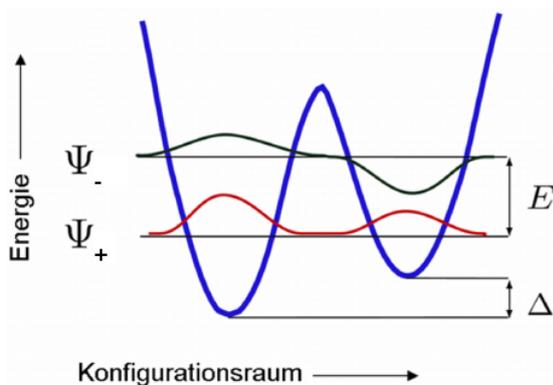


Abb. 2.6: Darstellung des Doppelmuldenpotentials mit eingezeichneten Wellenfunktionen.

2.2.2 Verteilungsfunktion der Parameter

Möchte man das Tieftemperaturverhalten amorpher Festkörper mit dem Tunnelmodell beschreiben, so braucht man Kenntnis über die zugrundeliegende Potentiallandschaft. Anders ausgedrückt muss die Verteilung der Parameter im Glas, welche die Doppelmuldenpotentiale beschreiben, bekannt sein.

Im Tunnelmodell wird eine breite Verteilung der Parameter Δ und λ angenommen. Außerdem geht man davon aus, dass diese Parameter unabhängig voneinander sind. Die Verteilungsfunktion unter diesen Annahmen lautet

$$P(\Delta, \lambda) d\Delta d\lambda = \bar{P} d\Delta d\lambda, \quad (2.18)$$

wobei die Konstante \bar{P} experimentell bestimmt werden muss. Diese Annahmen zur Verteilung der Tunnelparameter sind rein phänomenologischer Natur, werden jedoch durch viele experimentelle Ergebnisse bestätigt.

Eine dem Experiment nähere Darstellung der Verteilungsfunktion erhält man durch eine Jakobi-Transformation von den Parametern (Δ, λ) zu den Parametern (E, Δ_0) . Anhand (2.15) und (2.16) unter Vernachlässigung der schwachen Abhängigkeit von $\sqrt{\lambda}$ finden wir

$$P(E, \Delta_0) dE d\Delta_0 = \bar{P} \frac{E}{\Delta_0 \sqrt{E^2 - \Delta_0^2}} dE d\Delta_0. \quad (2.19)$$

Abbildung 2.19 zeigt die Verteilung $P(E, \Delta_0)$ in Abhängigkeit des Parameters Δ_0/E .

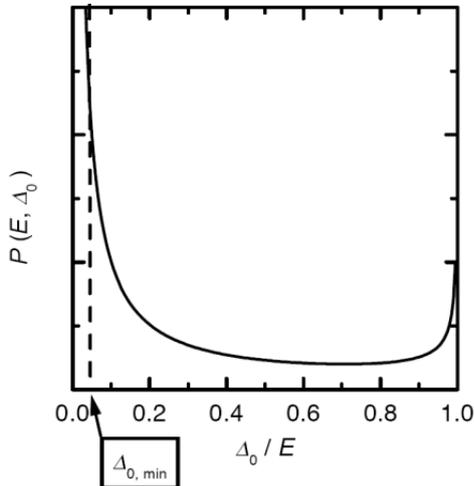


Abb. 2.7: Verteilung $P(E, \Delta_0)$ aus (2.19) in Abhängigkeit von Δ_0/E .

Die Singularität bei $\Delta_0/E = 0$ ist nicht integrierbar, weshalb die Verteilung unterhalb eines Wertes $\Delta_{0,\min}$ abgeschnitten werden muss. Da desweiteren $E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}$ gilt, stellt der Wert $\Delta_{0,\min}$ somit auch eine untere Schranke für die Energieaufspaltung der Tunnelssysteme dar.

Die Zustandsdichte $D(E)$ der Tunnelssysteme des Tunnelmodells erhält man durch Sum-

mation über alle möglichen Tunnelaufspaltungen

$$D(E) = \int_{\Delta_{0,\min}}^E P_2(E, \Delta_0) d\Delta_0 = \bar{P} \ln \left(\frac{2E}{\Delta_{0,\min}} \right). \quad (2.20)$$

Bis auf eine schwache logarithmische Abhängigkeit ist die Zustandsdichte konstant. Aus Messungen der spezifischen Wärme kann die Anzahldichte $n = \int_0^\infty D(E) dE/V$ der Tunnelsysteme bestimmt werden. Ist n_{FK} die Teilchenzahldichte des Festkörpers, so gilt für die Anzahldichte n der Tunnelsysteme

$$\frac{n}{n_{\text{FK}}} \sim 10^{-5}. \quad (2.21)$$

Dies bedeutet, dass bei ungefähr 10^5 Atomen oder Molekülen nur ein Tunnelsystem zu finden ist. Diese Konzentration scheint gering genug, um die Tunnelsysteme als isoliert zu betrachten. Trotzdem gibt es Hinweise auf eine Wechselwirkung zwischen den Tunneleinheiten, welche besonders bei sehr tiefen Temperaturen berücksichtigt werden müsste.

2.2.3 Wechselwirkung mit elektrischen Feldern

Da Tunnelsysteme in vielen Materialien ein elektrisches Dipolmoment tragen, können sie mit elektrischen Feldern wechselwirken.

Sind die elektrischen Messfelder nicht zu groß, kann ihre Wechselwirkung mit Tunnelsystemen stets als Störung betrachtet werden. Als Kriterium, ob die Messfelder als kleine Störung behandelt werden können, hat sich die folgende Abschätzung bewährt

$$p_0 F \ll k_B T. \quad (2.22)$$

Hier ist F die angelegte Feldstärke und p_0 das Dipolmoment der Tunnelsysteme, welches meist Werte im Bereich von einigen Debye ($3.3 \cdot 10^{-30}$ Cm) besitzt. Ist dieses Kriterium erfüllt, befindet man sich im sogenannten linearen Bereich der Anregung. Dies bedeutet, dass die elektrische Suszeptibilität unabhängig von der elektrischen Feldstärke ist (siehe hierzu *Linear Response Theory*, [Kub85])

$$\chi = \frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial P(\omega)}{\partial F} = \text{const.} \quad (2.23)$$

Ist das Kriterium nicht erfüllt, kommt es zu nicht-linearen Effekten, welche die Messgröße abhängig von der angelegten Amplitude des Störfeldes macht. Zum Beispiel zeigen Messungen der Schallgeschwindigkeit und der inneren Reibung von Vibrating-Reed-Experimenten starke Abhängigkeiten von den angelegten Verzerrungsfeldern (siehe [Esq92]) in der Probe. Ein theoretisches Modell, um diese Effekte zu beschreiben, wurde von Stockburger *et al.* entwickelt [Sto95].

Prinzipiell bewirken die Störfelder Änderungen der Parameter Δ und Δ_0 und, um die

Wechselwirkung störungstheoretisch behandeln zu können, wird die Annahme gemacht, dass die Änderungen in Δ und Δ_0 klein sind.

Eine übliche, von vielen Experimenten gestützte weitere Annahme (siehe z.B. [Jäc72]) ist, die Änderung der Tunnelaufspaltung $\delta\Delta_0$ gegen die Änderung der Asymmetrieenergie $\delta\Delta$ zu vernachlässigen. Da man davon ausgehen kann, dass sich der Abstand d und die Tunnelbarriere V_B des Doppelmuldenpotentials beim Anlegen eines Feldes nur sehr schwach ändert und da der Überlapp der Wellenfunktionen ψ_A und ψ_B sehr klein ist, sind die Änderungen in der Asymmetrieenergie um ein Vielfaches größer.

Für die Änderung der Asymmetrieenergie wird ein linearer Ansatz gemacht

$$\delta\Delta = \mathbf{p} \cdot \mathbf{F} \quad (2.24)$$

Hier ist \mathbf{p} der Unterschied des elektrischen Dipolmoments zwischen den beiden Mulden $\mathbf{p} = [\langle\psi_A|\mathbf{P}|\psi_A\rangle + \langle\psi_B|\mathbf{P}|\psi_B\rangle]$ der Tunnelsysteme und \mathbf{F} die angelegte Feldstärke.

Der Störoperator in der Basis der Zustände der harmonischen Teilpotentiale (2.6) ist gegeben durch

$$H_S = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & 0 \\ 0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

Wird der Störoperator in die Basis der Eigenzustände (2.17) des Doppelmuldenpotentials transformiert, erhält man für den Störoperator

$$\tilde{H}_S = \frac{1}{E} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \mathbf{p} \cdot \mathbf{F}. \quad (2.26)$$

Die Änderung der Energieaufspaltung wird beschrieben durch die Diagonalelemente dieses Hamiltonians und beträgt

$$\delta E = 2 \mathbf{p} \cdot \mathbf{F} \frac{\Delta}{E} = 2 \mathbf{p}_{\text{eff}} \cdot \mathbf{F}. \quad (2.27)$$

Es lässt sich leicht zeigen, dass die Besetzungszahldifferenz im Gleichgewicht zwischen den Niveaus durch

$$\Delta N = N_0 \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad (2.28)$$

gegeben ist. Die Besetzung der Niveaus E_{\pm} ist also abhängig von der Energieaufspaltung. Ein oszillierendes Störfeld moduliert somit periodisch den Gleichgewichtswert der Besetzungszahldifferenz. Die Änderung der makroskopischen Polarisation δP ist proportional zur Änderung der Besetzungszahldifferenz

$$\delta P = \delta(\Delta N) p_{\text{eff}} \quad (2.29)$$

und ist somit vom angelegten Störfeld abhängig.

2.2.4 Wechselwirkung mit Phononen

Wie wir in Abschnitt 2.2.5 sehen werden, ist die Kopplung der Tunnelsysteme an Phononen von großer Bedeutung. Bei den verwendeten Temperaturen ist der dominante Prozess die Wechselwirkung mit genau einem Phonon. Hier werden durch Emission oder Absorption eines Phonons Übergänge zwischen dem Grundzustand und dem angeregten Zustand induziert.

Die Kopplung wird in Analogie zur Wechselwirkung mit elektrischen Feldern behandelt. Hier wird die Asymmetrieenergie jedoch durch ein Verzerrungsfeld moduliert. Eine detaillierte Berechnung findet sich in [Jäc72]. Das zum Energieeigenwert E_+ gehörende Ener-

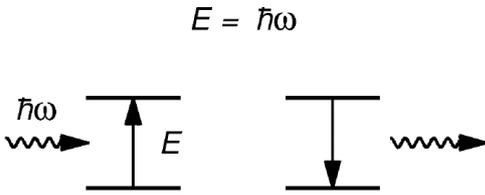


Abb. 2.8: Durch Absorption oder Emission eines Phonons der Frequenz ω wird ein Übergang induziert.

gieniveau wird im Folgenden mit Niveau 1, das zum Energieeigenwert E_- gehörende Energieniveau mit Niveau 2 bezeichnet. Die Wahrscheinlichkeitsrate W_{12} für einen Übergang von Niveau 1 zu Niveau 2 kann mit Fermis Goldener Regel berechnet werden

$$W_{12} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_2 | H_{\text{elast.}} | \psi_1 \rangle|^2 D(E) f(E) \delta(\hbar\omega = E), \quad (2.30)$$

mit dem elastischen Stör-Hamiltonoperator $H_{\text{elast.}}$ der Kopplung der Phononen an die Tunnelsysteme, der Bose-Einstein-Besetzungszahl $f(E)$ der Phononen und der Zustandsdichte

$$D(E) = \frac{E^2}{2\pi^2 \hbar^3 v_\alpha^3} \quad (2.31)$$

der Phononen nach dem Debye-Modell.

Die Relaxationsrate τ^{-1} , mit der Phononen mit Tunnelsystemen wechselwirken, berechnet sich schließlich zu

$$\tau^{-1} = W_{12} + W_{21} = \left(\frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2 \frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) \frac{\Delta_0^2 E}{2\pi \rho \hbar^4} \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right), \quad (2.32)$$

wobei ρ für die Dichte der Probe, die Indizes l und t für den longitudinalen und transversalen Anteil des Deformationspotentials γ und v für die Schallgeschwindigkeit stehen. Die schnellsten Raten besitzen symmetrische Tunnelsysteme ($\Delta = 0$).

Mit der Relaxationsrate (2.32) lässt sich eine weitere Verteilungsfunktion der Tunnelparameter angeben. Ausgehend von (2.19) ergibt sich durch eine weitere Jakobitransformation die Verteilung

$$P(E, \tau) dE d\tau = \frac{\bar{P}}{2\tau \sqrt{1 - \tau_{\min}(E)/\tau}} dE d\tau, \quad (2.33)$$

mit der Abkürzung

$$\tau_{\min}(E) = \frac{K}{E^3} \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \quad \text{und} \quad (2.34)$$

$$K = 2\pi\rho\hbar^4 \left(\frac{\gamma_1^2}{v_1^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5}\right)^{-1} \quad (2.35)$$

für die Relaxationszeit der schnellsten, das heisst symmetrischen Tunnelsysteme. Es lässt sich außerdem ein Ausdruck für die Tunnelsysteme mit den kleinsten Relaxationsraten angeben. Dies wird genau dann erfüllt, wenn die Tunnelaufspaltung Δ_0 ihren minimalen Wert besitzt

$$\tau_{\max} = \frac{K}{\Delta_{0,\min}^2 E} \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right). \quad (2.36)$$

2.2.5 Relaxationsprozesse

Setzt man eine amorphe Probe elektrischen Wechselfeldern aus, so versuchen die Tunnelsysteme durch Wechselwirkung mit dem Wärmebad ihre Besetzungszahldifferenz stets an die aktuelle, zeitlich variierende Energieaufspaltung anzupassen. Die dazu notwendigen Prozesse nennt man Relaxationsprozesse.

Mit der Umbevölkerung der Niveaus 1 und 2 ist eine teilweise Neuorientierung der Dipole verbunden, was zu einer Änderung δP der makroskopischen Polarisation führt. Wenn F das angelegte elektrische Feld in der Probe angibt, ist die Änderung der Polarisation in linearer Näherung durch

$$\delta P = \epsilon_0 \chi F \quad (2.37)$$

gegeben und liefert den Zusammenhang zur elektrischen Suszeptibilität χ . Die Gleichung

$$\epsilon = 1 + \chi \quad (2.38)$$

verknüpft die elektrische Suszeptibilität mit der dielektrischen Funktion, welche in der vorliegenden Arbeit gemessen wurde. Im Allgemeinen ist die elektrische Suszeptibilität χ und somit die dielektrische Funktion ϵ ein Tensor. Aufgrund der Isotropie amorpher Festkörper reduziert sich der Tensor jedoch zu einer komplexen Zahl.

Um die Relaxationsprozesse der Polarisation zu beschreiben, bedient man sich einem Relaxationsansatz

$$-\frac{\partial(\delta P)}{\partial t} = \frac{\delta P - \delta \hat{P}}{\tau}. \quad (2.39)$$

Hier wird angenommen, dass Abweichungen der Polarisation vom aktuellen Gleichgewichtszustand innerhalb einer endlichen, charakteristischen Relaxationszeit τ abgeklungen sind. Dem Hinterherleiten der Polarisation wird durch einen komplexen Ansatz der Suszeptibilität Rechnung getragen. Wir verwenden die Konvention

$$\chi = \chi' - i\chi''. \quad (2.40)$$

Da die Probe mit elektrischen Wechselfeldern angeregt wird, relaxiert die Polarisation nicht in Richtung des Gleichgewichtswertes P_0 ohne Störung, sondern zu dem momentanen Gleichgewichtswert \hat{P} , welcher erreicht werden würde, wenn die Tunnelsysteme beliebig schnell ($\tau \rightarrow 0$) relaxieren würden.

Setzt man ein periodisch oszillierendes Feld der Form $F = F_0 e^{-i\omega t}$ sowie einen linearen Ansatz analog zu (2.37) für den momentanen Gleichgewichtswert der Polarisation

$$\hat{P} = \epsilon_0 \hat{\chi} F \quad (2.41)$$

mit der statischen Suszeptibilität $\hat{\chi}$ in den Relaxationsansatz (2.39) ein, so erhält man für die elektrische Suszeptibilität

$$\chi = \frac{\hat{\chi}}{1 - i\omega\tau}. \quad (2.42)$$

Nun wird in dieser Gleichung die statische Suszeptibilität $\hat{\chi}$ mit den Größen des Tunnelmodells ausgedrückt. Hierzu benutzt man (2.41) mit der Umformung

$$\epsilon_0 \hat{\chi} = \frac{\partial(\delta\hat{P})}{\partial(\Delta N)} \frac{\partial(\Delta N)}{\partial E} \frac{\partial E}{\partial F} \quad (2.43)$$

und der Permittivität des Vakuums $\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ AsV}^{-1} \text{ m}^{-1}$. Berücksichtigt man, dass die Änderung der Polarisation durch (2.29) gegeben ist und verwendet (2.28) und (2.27), findet man den Ausdruck

$$\hat{\chi} = p \frac{\Delta}{E} (-2N) \frac{\partial f}{\partial E} 2p \frac{\Delta}{E} \frac{1}{\epsilon_0} \quad (2.44)$$

mit der Fermi-Verteilung

$$f = (e^{\frac{E}{k_B T}} + 1)^{-1}. \quad (2.45)$$

Setzt man diesen Ausdruck für die statische Suszeptibilität in (2.42) ein, erhält man die Änderung der Permittivität

$$\delta\epsilon = \delta\chi = -\frac{4N}{\epsilon_0} \left(\frac{p\Delta}{E} \right)^2 \frac{\partial f}{\partial E} \frac{1}{1 - i\omega\tau}. \quad (2.46)$$

Spaltet man diesen Term in Real- und Imaginärteil auf, erhält man schließlich den Relaxationsanteil der dielektrischen Funktion eines Tunnelsystems

$$\delta\epsilon'_{\text{rel}} = -\frac{4Np^2}{\epsilon_0} \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{\partial f}{\partial E} \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (2.47)$$

$$\delta\epsilon''_{\text{rel}} = -\frac{4Np^2}{\epsilon_0} \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{\partial f}{\partial E} \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}. \quad (2.48)$$

An dieser Stelle ist es wichtig zu erwähnen, dass (2.47) und (2.48) nur den Beitrag von einem Tunnelsystem mit fester Energieaufspaltung und festem Tunnelparameter beschreiben. Um Voraussagen für ein reales Glas zu treffen, müssen die Beiträge aller Tunnelsysteme mithilfe der Verteilung 2.18 aufsummiert werden.

Dem Realteil der dielektrischen Funktion $\delta\epsilon'$ entsprechen die energiespeichernden Prozesse. Verglichen mit einem RC-Kreis entsprechen diese Prozesse der Blindleistung, im zeitlichen Mittel wird hier also keine Energie verbraucht. Dem Imaginärteil $\delta\epsilon''$ entsprechen die dissipativen Prozesse. Hier wird vom Glas Energie aufgenommen, wie zum Beispiel bei der Umwandlung von elektrischer in thermische Energie in einem Widerstand. In Abbildung

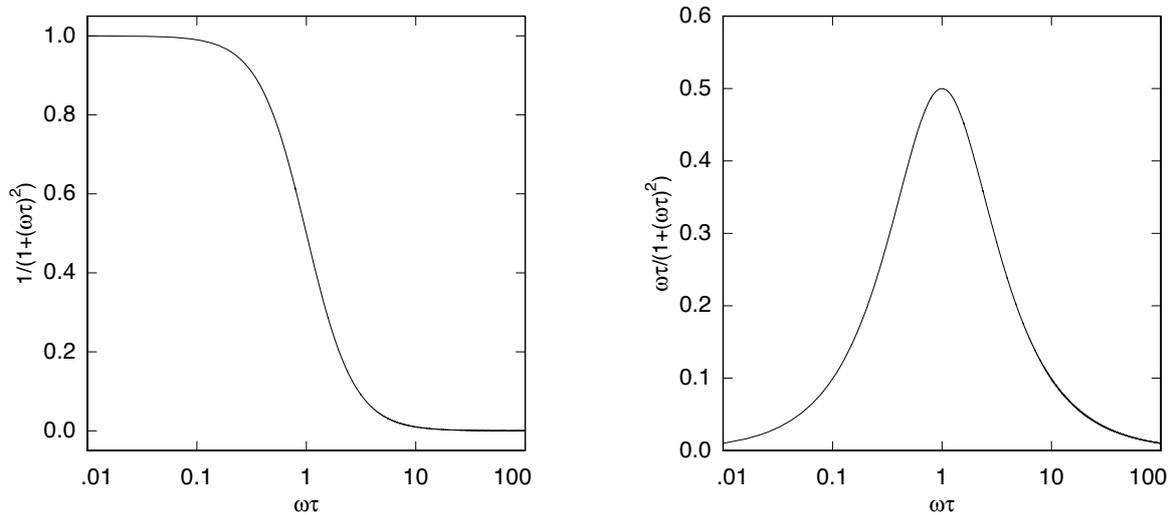


Abb. 2.9: Frequenzabhängige Faktoren des (links):Realteils (2.47) und des (rechts):Imaginärteils (2.48) des Relaxationsbeitrags eines Tunnelsystems zur dielektrischen Funktion.

2.9 sind die Abhängigkeiten des Relaxationsanteils von Frequenz und Relaxationszeit angegeben. Es zeigt sich das Verhalten eines Debye-Relaxators [Deb12b].

Für kleine Frequenzen ($\omega\tau \ll 1$) ist der Realteil der dielektrischen Funktion konstant und der Imaginärteil null. Dies bedeutet, dass die Tunnelsysteme der periodischen Änderung des elektrischen Feldes instantan folgen können und dem Feld somit keine Energie entzogen wird. Die Phasenverschiebung zwischen der Anregung und der makroskopischen Polarisation ist hier null.

Erhöht man die Frequenz, so können die Dipole dem Feld nicht mehr folgen und es kommt zu einer Phasenverschiebung zwischen dem elektrischem Wechselfeld und der Polarisation. Der Realteil der dielektrischen Funktion wird kleiner und im Gegenzug steigen die Verluste an. Im Bereich, bei dem die Relaxationsrate und die Anregungsfrequenz in der gleichen Größenordnung liegen ($\omega\tau \approx 1$), zeigt der Realteil die stärkste Änderung und die Verluste sind maximal. Die Phasenverschiebung beträgt hier $\pi/2$.

Bei noch höheren Frequenzen ($\omega\tau \gg 1$) gehen Real- sowie Imaginärteil gegen null. Die Dipole sind nicht mehr in der Lage der Anregung zu folgen. Dies bedeutet, dass keine Leistung in der Probe dissipiert wird. Die Phasenverschiebung beträgt hier π .

Aufgrund des Vorfaktors $(\Delta/E)^2$ in (2.47) und (2.48), ist der Relaxationsanteil der dielektrischen Funktion besonders groß für stark asymmetrische Doppelmuldenpotentiale. Der dominante Relaxationsprozess im untersuchten Temperaturbereich ist der Ein-Phonon-Prozess. Hat man Kenntnis über die Relaxationszeiten dieses Prozesses, kann der Relaxationsanteil der dielektrischen Funktion berechnet werden. Die An- und Abregung eines Tunnelsystems mittels eines Phonons wurde bereits in Abschnitt 2.2.4 behandelt, die Relaxationszeit ist durch (2.32) gegeben.

2.2.6 Resonante Prozesse

Neben den Relaxationsprozessen gibt es noch einen weiteren wichtigen Prozess, welche die dielektrische Funktion bei tiefen Temperaturen beeinflusst.

Ein Tunnelsystem kann resonant mit einem Photon (beziehungsweise Phonon) des anregenden Feldes wechselwirken, sofern die Energie des Photons $\hbar\omega$ mit der Energieaufspaltung des Tunnelsystems übereinstimmt. Befindet sich das Tunnelsystem im Grundzustand, so wird ein Übergang in den angeregten Zustand induziert. Ist das Tunnelsystem bereits angeregt, kommt es zur stimulierten Emission eines weiteren Quants mit der Energie $E = \hbar\omega$.

Eine detaillierte Berechnung des Beitrags der resonanten Prozesse zur dielektrischen Funktion findet sich in [Hun76]. Bei der Herleitung wird die Analogie des Gesamthamiltonians eines gestörten Tunnelsystems zu einem Spin mit $S = 1/2$ in einem oszillierenden magnetischen Feld herangezogen und die Beiträge zur dielektrischen Funktion mithilfe der Bloch-Gleichungen berechnet.

Zu einem effektiven Beitrag zur Absorption kann es allerdings nur kommen, wenn ein Ungleichgewicht in der Besetzung der Niveaus vorliegt, da ansonsten die induzierte Emission und die Absorption gleichwahrscheinlich sind. Um einem großen Beitrag zur dielektrischen Funktion zu erhalten, muss wegen der Besetzungszahldifferenz (2.28) das Kriterium $E > k_B T$ erfüllt sein. Berücksichtigt man zusätzlich die Bedingung $E = \hbar\omega$, erkennt man, dass die Frequenz des anregenden Feldes im hier betrachteten Temperaturbereich von einigen 10 mK in der Größenordnung $\omega \approx 1$ GHz liegen müsste, um einen großen resonanten Beitrag in der Absorption zu verursachen. Dies ist bei der vorliegenden Arbeit nicht der Fall, weshalb der resonante Anteil der dissipativen Prozesse vernachlässigt werden kann

$$\delta\epsilon''_{\text{res}} \cong 0. \quad (2.49)$$

Im Gegensatz zu den dissipativen Prozessen können Tunnelsysteme mit $E \gg \hbar\omega$ zum Realteil der dielektrischen Funktion beitragen. Unter der Annahme von niedrigen Messfrequenzen erhält man für den Realteil der dielektrischen Funktion

$$\delta\epsilon'_{\text{res}} = \frac{Np^2}{\epsilon_0} \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \frac{1}{E} \tanh \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (2.50)$$

2.2.7 Integration und Näherung der Beiträge

Die Beiträge zur dielektrischen Funktion aus den Abschnitten 2.2.5 und 2.2.6 beschreiben die Auswirkungen von N Tunnelsystemen mit identischen Werten der Energieaufspaltung und des Tunnelparameters. Möchte man Aussagen über ein reales Glas treffen, muss man in (2.47), (2.48) und (2.50) die Anzahl N mit einer Verteilungsfunktion ersetzen und anschließend über alle möglichen Werte der Tunnelparameter integrieren.

Relaxationsprozesse

Integration von (2.47) und (2.48) mit der Verteilungsfunktion P aus (2.33) über die Parameter E und τ liefert

$$\frac{\delta\epsilon'_{\text{rel}}}{\epsilon'} = \frac{\bar{P}p_0^2}{6\epsilon_0\epsilon'k_B T} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} dE \int_{\tau_{\min}(E)}^{\tau_{\max}(E)} \frac{d\tau}{\tau} \left(1 - \frac{\tau_{\min}(E)}{\tau}\right)^{-\frac{1}{2}} \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (2.51)$$

und

$$\frac{\delta\epsilon''_{\text{rel}}}{\epsilon'} = \frac{\bar{P}p_0^2}{6\epsilon_0\epsilon'k_B T} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} dE \int_{\tau_{\min}(E)}^{\tau_{\max}(E)} \frac{d\tau}{\tau} \left(1 - \frac{\tau_{\min}(E)}{\tau}\right)^{-\frac{1}{2}} \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (2.52)$$

mit dem Realteil der dielektrischen Funktion ϵ' .

Um Näherungsausdrücke für die Integrale zu erhalten, können wir die Relaxation in einen Tief- und einen Hochtemperaturbereich aufteilen.

Im Tieftemperaturbereich ($\omega\tau_{\min} \gg 1$) erkennt man, dass die Relaxationsraten so klein sind, dass die Tunnelsysteme kaum in der Lage sind der äußeren Störung zu folgen. Hier dominieren also die resonanten Prozesse den Realteil der Permittivität und der Relaxationsanteil kann vernachlässigt werden.

$$\left. \frac{\delta\epsilon'_{\text{rel}}}{\epsilon'} \right|_{\omega\tau_{\min} \gg 1} \approx 0 \quad (2.53)$$

Beim Imaginärteil der Permittivität hingegen sind die Relaxationsprozesse, wie im vorherigen Abschnitt gezeigt, im gesamten betrachteten Temperaturbereich dominant, da die resonanten Prozesse keinen Beitrag liefern. Als Näherung für (2.52) erhält man (siehe [Esq98])

$$\left. \frac{\delta\epsilon''_{\text{rel}}}{\epsilon'} \right|_{\omega\tau_{\min} \gg 1} \approx \frac{\pi^4}{36} \frac{\bar{P}p_0^2 k_B^3}{K\omega\epsilon_0\epsilon'} T^3 \quad (2.54)$$

mit der Abkürzung K aus (2.35).

Im Hochtemperaturbereich ($\omega\tau_{\min} \ll 1$) wird im Realteil der Relaxationsanteil dominant

und man kann das Integral nähern zu

$$\frac{\delta\epsilon'_{\text{rel}}}{\epsilon'} \Big|_{\omega\tau_{\text{min}} \ll 1} \approx \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'} \ln\left(\frac{T}{T_0}\right). \quad (2.55)$$

Die dissipativen Prozesse werden in diesem Temperaturbereich temperatur- und frequenzunabhängig

$$\frac{\delta\epsilon''_{\text{rel}}}{\epsilon'} \Big|_{\omega\tau_{\text{min}} \ll 1} \approx \frac{\pi}{6} \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'}. \quad (2.56)$$

Resonante Prozesse

Um den Beitrag der resonanten Prozesse zur Permittivität zu berechnen, wird (2.50) mit der Verteilungsfunktion P aus (2.19) multipliziert und über die Parameter E und Δ_0 integriert, wobei man die Integration über Δ_0 analytisch ausführen kann. Wie bereits diskutiert, ist der Beitrag zum Imaginärteil der dielektrischen Funktion vernachlässigbar.

$$\frac{\delta\epsilon'_{\text{res}}}{\epsilon'} = \frac{\bar{P}p_0^2}{3\epsilon_0\epsilon'} \int_{\Delta_{0,\text{min}}}^{E_{\text{max}}} \frac{dE}{E} \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \left(1 - \frac{\Delta_{0,\text{min}}^2}{E^2}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.57)$$

$$\frac{\delta\epsilon''_{\text{res}}}{\epsilon'} = 0 \quad (2.58)$$

Auch für diesen Beitrag zur Permittivität lassen sich Näherungslösungen angeben. Man erhält (siehe [Esq98])

$$\frac{\delta\epsilon'_{\text{res}}}{\epsilon'} \approx -\frac{2}{3} \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'} \ln\left(\frac{T}{T_0}\right). \quad (2.59)$$

Bezeichnet man mit T^* die Temperatur, welche die dominanten Temperaturbereiche der beiden Prozesse trennt, lässt sich zusammenfassend

$$\frac{\delta\epsilon'}{\epsilon'} = \begin{cases} -\frac{2}{3} \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'} \ln\left(\frac{T}{T_0}\right) & T < T^* \\ \frac{1}{3} \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'} \ln\left(\frac{T}{T_0}\right) & T > T^* \end{cases} \quad \text{und} \quad (2.60)$$

$$\frac{\delta\epsilon''}{\epsilon'} = \begin{cases} \frac{\pi^4}{36} \frac{\bar{P}p_0^2 k_{\text{B}}^3}{K\omega\epsilon_0\epsilon'} T^3 & T < T^* \\ \frac{\pi}{6} \frac{\bar{P}p_0^2}{\epsilon_0\epsilon'} & T > T^* \end{cases} \quad (2.61)$$

schreiben. Neben diesen Abschätzungen für den Hoch- und Tieftemperaturbereich können die Integrale aus diesem Kapitel durch numerische Methoden berechnet werden. Hierzu wurde ein Programm geschrieben, welches den Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion berechnet.

In Abbildung 2.10 sind die numerisch berechneten Anteile des Realteils sowie deren Summe aufgetragen. Die Lage des Minimums des Realteils der dielektrischen Funktion ist von

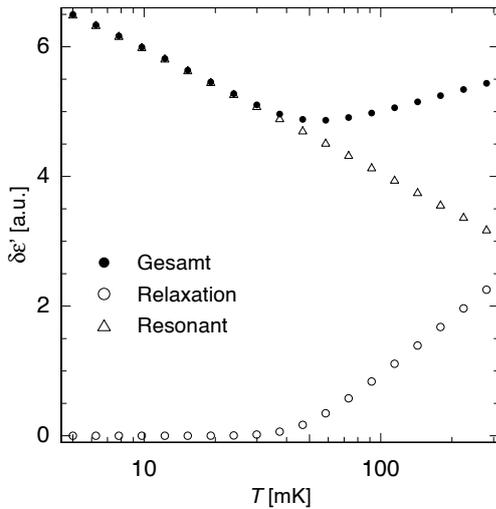


Abb. 2.10: Numerische Berechnung des Realteils der dielektrischen Funktion aus (2.51) und (2.57). Die Abhängigkeit der Permittivität wird im Tieftemperaturbereich von den resonanten Prozessen, im Hochtemperaturbereich von den Relaxationsprozessen dominiert. Die Berechnung wurde durchgeführt mit $\Delta_{0,\min}/k_B = 1$ mK, $E_{\max}/k_B = 10$ K, $\omega/2\pi = 1$ kHz sowie den Parametern aus Tabelle 3.4 für das Glas BK7 erstellt.

der verwendeten Messfrequenz abhängig. Das Tunnelmodell liefert den Zusammenhang

$$T_{\min} = \left(\frac{K}{4k_B^3} \omega \right)^{1/3}, \quad (2.62)$$

mit der Konstanten K aus (2.35).

2.3 Abweichungen vom Tunnelmodell

In den vorherigen Kapiteln wurden einige Aussagen anhand des Tunnelmodells über das Verhalten der dielektrischen Funktion von Gläsern hergeleitet. Allerdings wurden experimentell bei unterschiedlichen Gläsern wiederholt Abweichungen dieser Voraussagen des Tunnelmodells gefunden.

In Abbildung 2.11 ist eine Messung der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion gezeigt. Zwei Details können nicht in Einklang mit dem Tunnelmodell gebracht werden. Das Steigungsverhältnis links- und rechtsseitig des Minimums besitzt nach der Voraussage des Tunnelmodells (2.60) den Wert -2:1. Das Steigungsverhältnis liegt bei dieser Messung jedoch näher an dem Wert -1:1. Diese Abweichung wurde auch bei Messungen an anderen dielektrischen Gläsern gefunden (siehe beispielsweise [CE89]). Außerdem ergibt sich nach dem Tunnelmodell in logarithmischer Auftragung auf der Tieftemperaturseite der dielektrischen Funktion eine Gerade. In Abbildung 2.11 weichen unterhalb von ungefähr 40 mK die Messpunkte von der theoretischen Voraussage (gestrichelte Linie) ab und gehen schließlich bei sehr tiefen Temperaturen in Sättigung. Auch dieses Verhalten wurde von Messungen an anderen Gläsern bestätigt [Rog97].

In einer Arbeit von A. Würger [Wür94] wird das soeben beschriebene Verhalten an KCL-Kristallen mit Litiumdefekten durch eine Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen erklärt. Dort wird mit der mittleren Wechselwirkungsenergie \bar{J} der Parameter $\mu = \bar{J}/\Delta_0$

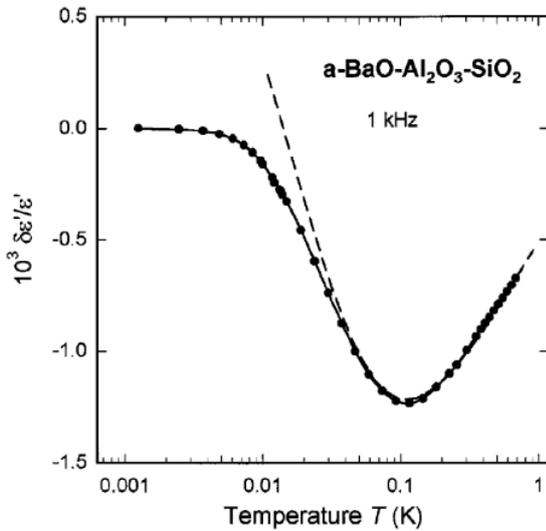


Abb. 2.11: Messung des Realteils der dielektrischen Funktion an a-BaO-Al₂O₃-SiO₂ nach [Str00]. Die gestrichelte Linie stellt die Voraussage des Tunnelmodells dar, die durchgezogene Linie verbindet lediglich die Messpunkte. Die Abhängigkeit der dielektrischen Funktion stimmt im Tieftemperaturbereich nicht mit der theoretischen Vorhersage aus Abschnitt 2.2.7 überein.

definiert, welcher das Verhalten der Tunnelsysteme untereinander bestimmt. Anschließend wurde dieses Modell auf amorphe Festkörper erweitert [Ens97]. Die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander wird durch ein Verzerrungsfeld erklärt. Für die Temperaturabhängigkeit des Parameters μ wurde $\mu \propto T^{-1}$ gefunden. Bei einer geringen Dichte der Tunnelzentren sowie hohen Temperaturen ($\mu \ll 1$) wird die Dynamik des Systems durch die Wechselwirkung zwischen dem äußeren Feld und dem Dipolmoment der Tunnelsysteme dominiert und es findet kohärentes Tunneln statt. Bei tieferen Temperaturen ($\mu \approx 1$) wird die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander wichtig, sodass ein Übergang zu inkohärentem Tunneln stattfindet. Im Extremfall $\mu \gg 1$ gibt es keine kohärente Tunnelbewegung mehr, weshalb es keinen resonanten Beitrag zu den dielektrischen Eigenschaften gibt. Zusätzlich eröffnet jedoch die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander einen weiteren Weg zur Relaxation des Systems. Dieser macht sich durch einen schwächeren Anstieg des Imaginärteils der dielektrischen Funktion auf der Tieftemperaturseite im Vergleich zur Voraussage des Tunnelmodells (2.61) bemerkbar.

2.4 Auswirkungen von magnetischen Feldern auf die dielektrische Funktion

Ein erster, überraschender Nachweis für eine Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von magnetischen Feldern wurde von P. Strehlow in einer Messung an dem Multikomponentenglas a-BaO-Al₂O₃-SiO₂ im Jahre 1997 in einem Kernentmagnetisierungskryostaten an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Berlin gefunden [Str98]. Man kühlte die Glasprobe auf $T = 1,85$ mK ab und legte ein sehr schwaches, in der Zeit veränderliches magnetisches Feld an. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 2.12 gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die relative Permittivität den Änderungen des Magnetfeldes folgt. In weiteren Messungen wurde gezeigt, dass sich bei verschiedenen Temperaturen die

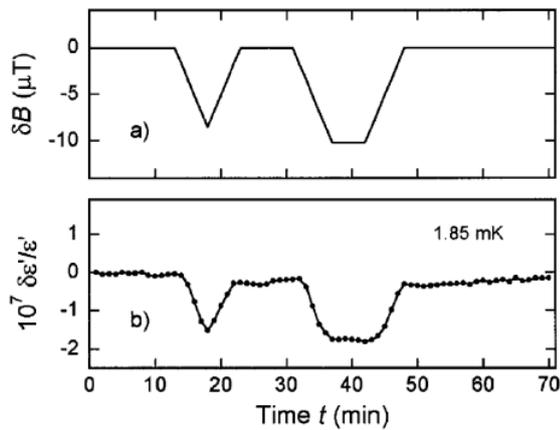


Abb. 2.12: Änderung der dielektrischen Funktion von a-BaO-Al₂O₃-SiO₂ in Abhängigkeit eines Magnetfeldes. Aufgetragen sind in (a): die zeitliche Veränderung des magnetischen Feldes und in (b): die durch das magnetische Feld induzierte relative Änderung der Permittivität.

Antwort der dielektrischen Funktion auf das Magnetfeld qualitativ ändert. Im Temperaturbereich von 5,07 mK bis 1,4 mK konnte die Abhängigkeit vom magnetischen Feld aus Abbildung 2.12 qualitativ reproduziert werden, wohingegen bei niedrigeren sowie höheren Temperaturen die Permittivität bei gleichem Feldverlauf konstant blieb. Desweiteren wurde bei dieser Messung festgestellt, dass die Streuung der Messwerte unterhalb von $T = 5$ mK stark reduziert wurde, was bedeuten könnte, dass ein neuer Mechanismus die Dynamik des Systems in diesem Temperaturbereich bestimmt.

In einem weiteren Experiment wurde die Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion ohne Anlegen eines externen Magnetfeldes im Bereich von $T = 7$ mK bis $T = 5$ mK gemessen. Die Messung ist in Diagramm 2.13 abgebildet. Die Probe wurde auf 6,88 mK vorgekühlt und anschließend mit einer konstanten Kühlrate weiter abgekühlt. Das überraschende

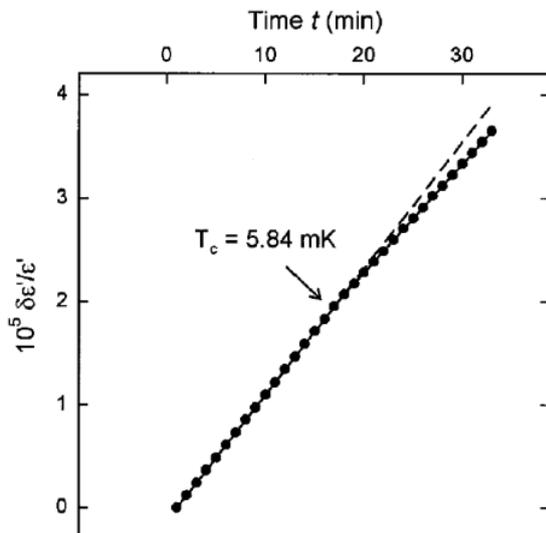


Abb. 2.13: Änderung der dielektrischen Funktion von a-BaO-Al₂O₃-SiO₂ in Abhängigkeit der Zeit beim Abkühlen mit konstanter Kühlrate. Bei $T_c = 5,84$ mK kommt es zu einer abrupten Steigungsänderung.

schende Ergebnis dieser Messung war eine plötzliche Steigungsänderung bei einer Temperatur von $T_c = 5,84$ mK. Ausgehend von hohen Temperaturen steigt die relative Änderung der Permittivität mit einer nahezu konstanten Rate an, bis bei T_c die Gerade abknickt und sich mit kleinerer Steigung fortsetzt. Die gestrichelte Linie in Abbildung 2.13 ist die

Fortsetzung der Geraden, auf der die Messpunkte bei hohen Temperaturen liegen.

In [Str98] wird außerdem berichtet, dass der hier diskutierte Effekt auch bei anderen Multikomponentengläsern zu finden ist. Desweiteren wird argumentiert, dass der Knick möglicherweise ein Zeichen für einen Phasenübergang von bisher ungeklärtem Typ sein könnte. Die Vermutung liegt nahe, dass es sich hierbei um universelle Effekte in Gläsern handelt, welche sich dann auch in anderen Messgrößen niederschlagen müssten.

2.4.1 Einfluss magnetischer und elektrischer Kernmomente

Dielektrische Polarisationsmessungen zählen zu den wichtigsten Messmethoden, um die Abhängigkeit der Dynamik von Tunnelsystemen von magnetischen Feldern zu untersuchen. Diese Technik und deren Ergebnisse werden hier kurz vorgestellt.

In Analogie zur gepulsten NMR-Spektroskopie wird mittels zweier elektrischer, hochfrequenter Pulse ein dielektrisches Echo erzeugt. Die Hochfrequenzpulse koppeln hierbei an das elektrische Dipolmoment der Tunnelsysteme an. Die Pulse werden in einem zeitlichen Abstand τ_{12} in die Probe eingestrahlt. Der erste Puls wechselwirkt mit den Tunnelsystemen und bewirkt eine gleichphasige Oszillation der Tunnelsysteme, was sich als makroskopische Polarisation bemerkbar macht. Endet der Puls, so oszilliert jedes resonante Tunnelsystem mit seiner spezifischen Larmorfrequenz $\omega = E/\hbar$, sodass die makroskopische Polarisation schnell abklingt. Dieses Phänomen ist unter dem Namen *free induction decay* bekannt. Um ein Echo zu erzeugen, strahlt man nach der Zeit τ_{12} den zweiten Puls ein. Wählt man die Dauer und die Intensität des Pulses in geeigneter Weise, so wirkt dieser wie eine Zeitumkehr, sodass die Phasendifferenz zwischen den außer Phase geratenen Tunnelsystemen wieder abnimmt und nach der Zeit $2\tau_{12}$ die Polarisation vollständig aufgebaut wird. Diesen Effekt bezeichnet man als Echo. Die Messgröße dieser Technik ist die Amplitude des Echos, welche in Abhängigkeit vom Pulsabstand oder von einem äußeren magnetischen Feld gemessen werden kann. Abbildung 2.14 zeigt die Auswirkungen eines magnetischen Feldes auf die Echoamplitude von Glycerin mit einer unterschiedlichen Isotopenzusammensetzung. Natürliches, undeutertes Glycerin, Glycerin-d0, zeigt fast keine Reaktion seiner Echoamplitude auf das magnetische Feld, die Echoamplitude von voll deuteriertem Glycerin, Glycerin-d8, bricht hingegen auf weniger als die Hälfte zusammen. In seiner natürlichen Zusammensetzung ist die von Glycerin-d0 $C_3H_8O_3$. Bei der Probe Glycerin-d8 ($C_3D_8O_3$) wurden sämtliche Wasserstoffatome durch Deuterium ersetzt. Ein wichtiger Unterschied der beiden Proben ist, dass Glycerin-d0 kein elektrisches Kernquadrupolmoment besitzt. Das bei Glycerin-d8 eingebrachte Deuterium besitzt einen Kernspin von $I = 1$ und somit ein von null verschiedenes Kernquadrupolmoment. Abbildung 2.14 ist ein sehr starkes Argument dafür, dass die magnetischen Eigenschaften von Tunnelsystemen durch Kernquadrupolmomente bestimmt werden. In einem Artikel von A. Würger, A. Fleischmann und C. Enss [W02] wird die Abhängigkeit der Echoamplitude von magnetischen Feldern mithilfe von Quadrupolmomenten der am Tunnelprozess betei-

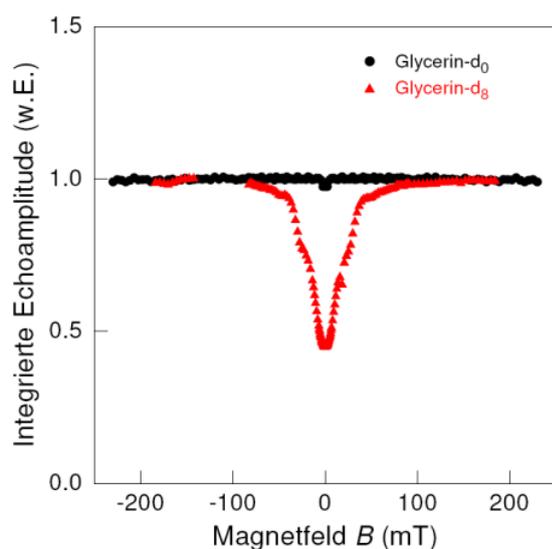


Abb. 2.14: Abhängigkeit der Amplitude von dielektrischen Zweipulspolarisationsechos von magnetischen Feldern in undeutertem (schwarze Punkte) und volldeutertem (rote Punkte) Glycerin. Deutlich zu erkennen ist der Unterschied der Messdaten bei schwachen magnetischen Feldern. Nach [Nag04].

lichten Kerne erklärt. Hierzu wurde das Tunnelmodell um zwei Effekte erweitert. Die erste Erweiterung berücksichtigt die Wechselwirkung zwischen dem Kernquadrupolmoment und dem elektrischen Feldgradienten ∇E_{EF} , welcher zum Beispiel durch die chemische Bindung der am Tunnelprozess beteiligten Kerne oder benachbarte Ladungen bestimmt ist. Dies führt bei Kernen mit $I \geq 1$ zu einer Aufspaltung der Kernniveaus. Jedes Tunnelniveau spaltet hierbei in $(2I+1)$ Unterniveaus auf. Ist diese Wechselwirkung in den Mulden unterschiedlich, so ergeben sich verschiedene Zustände bezüglich des Hamilton-Operators der Kernquadrupolwechselwirkung. Ist mit dem Tunneln des Teilchens eine

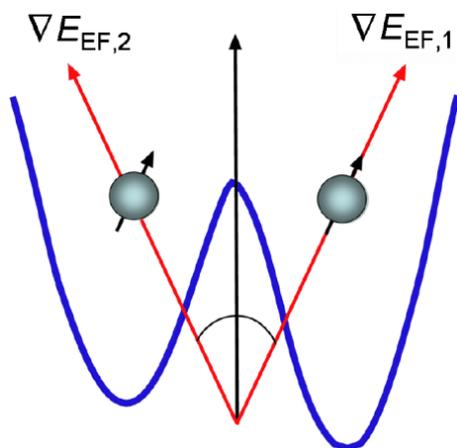


Abb. 2.15: Ein Tunnelsystem abgebildet im Doppelmuldenpotential. Beim Übergang von einem reinen Zustand in der rechten zur linken Mulde bleibt die Orientierung des Kernspins aufgrund langer Relaxationszeiten erhalten. Der elektrische Feldgradient hingegen ändert seine Richtung, weshalb sich das Teilchen nach dem Tunneln nicht mehr in einem reinen Zustand befindet.

Veränderung der relativen Orientierung des elektrischen Feldgradienten und der Quantisierungsachse des Quadrupolmomentes verbunden, so befindet sich das tunnelnde Teilchen nicht mehr in einem reinen Zustand bezüglich der Kernquadrupolwechselwirkung und die Hilberträume der Kernspins und des Tunnelmodells werden gekoppelt.

Mit der zweiten Erweiterung wird der Zeeman-Effekt berücksichtigt. Wird ein magnetisches Feld an die Probe angelegt, koppeln die Kernspins an das magnetische Feld und Entartungen der Kernniveaus werden aufgehoben. Je höher das magnetische Feld ist, desto

dominanter wird der Zeemann-Effekt und umso unbedeutender wird die Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Feldgradienten und den Kernquadrupolmomenten. Bei sehr hohen Feldern sind nur noch Übergänge mit gleicher z-Komponente des Kernspin möglich und man erhält ein Zweiniveausystem. Dies bedeutet im Falle von Glycerin, dass bei ausreichend hohen Feldern die Kernquadrupolwechselwirkung zu vernachlässigen und die Echoamplitude unabhängig von der Isotopenzusammensetzung ist, was in Abbildung 2.14 deutlich zu erkennen ist. Das Kernquadrupolmodell ermöglicht numerische Rechnungen,

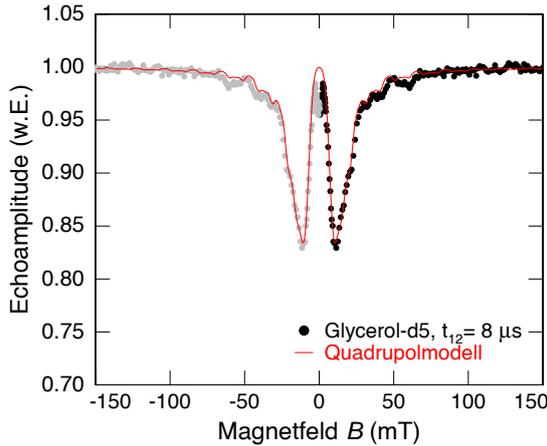


Abb. 2.16: Bild eines Vergleichs einer numerischen Rechnung nach dem Kernquadrupolmodell mit der gemessenen Echoamplitude bei einem Pulsabstand von $\tau_1 = 8 \mu\text{s}$ von Glycerin-d5 nach [Baz08]. Die Daten bei negativen magnetischen Feldern wurden bei $B = 0$ gespiegelt.

welche mit Messdaten verglichen werden können. Abbildung 2.16 zeigt eindrucksvoll den übereinstimmenden Verlauf von Theorie und Experiment.

Die sehr gute Übereinstimmung des Kernquadrupolmodells mit den gemessenen Echoamplituden in Echoexperimenten an unterschiedlichen Gläsern legt nahe, dass das Kernquadrupolmodell eine universelle Erklärung für die magnetischen Eigenschaften von amorphen Festkörpern liefern kann. Ob dies für die dielektrische Funktion im Kilohertz-Bereich tatsächlich zutrifft, ist noch nicht geklärt. Im nächsten Abschnitt wird der Einfluss der Quadrupolmomente der Kerne auf Messungen der dielektrischen Funktion motiviert.

2.4.2 Übertragen des Kernquadrupolmodells auf dielektrische Eigenschaften

Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, weicht die gemessene dielektrische Funktion bei Temperaturen unter 100 mK zum Teil drastisch von den Vorhersagen des Tunnelmodells ab. In vielen Fällen wurde versucht, diese Abweichungen durch die im Tunnelmodell fehlende Wechselwirkung zwischen den Tunnelsystemen zu erklären. Auch wenn die Anzahldichte der Tunnelsysteme klein gegenüber der Anzahldichte der Atome oder Moleküle ist, können sich Dipolmomente der Tunnelsysteme untereinander beeinflussen. Dieses Modell kann die Abhängigkeit von externen magnetischen Feldern jedoch nicht erklären.

Ein weiterer Ansatz die Tieftemperaturanomalien der dielektrischen Funktion zu erklären, basiert auf der Wechselwirkung der Quadrupolmomente der Kerne mit den elektrischen Feldgradienten [Bur06]. Einen wichtigen Hinweis auf die Gültigkeit dieses Ansatzes ge-

ben Messungen der dielektrischen Funktion von Mylar und dem Multikomponentenglas BK7 [Rog97]. Mylar besitzt die Summenformel $C_{10}H_8O_4$. Sämtliche Kerne dieses Moleküls besitzen kein Quadrupolmoment Q . Bei einer Messung der dielektrischen Funktion dieses Glases wurden keine Abweichungen vom Tunnelmodell gemessen. Genauer gesagt folgt der Realteil der dielektrischen Funktion $\epsilon'(T)$ bis zur tiefsten gemessenen Temperatur von $T = 500 \mu\text{K}$ nahezu dem vorhergesagten logarithmischen Verhalten des Tunnelmodells. Das Multikomponentenglas BK7 besitzt hingegen Bestandteile, welche ein nukleares Quadrupolmoment tragen. Dies sind die Elemente Si, O, B, Na und K. Bei Messungen der dielektrischen Funktion an diesem Glas wurden die Anomalien aus Kapitel 2.3 bestätigt. In Tabelle 3.4 sind Kernquadrupolmomente verschiedener Elemente aufgeführt.

Die Abweichungen vom Tunnelmodell aus Abbildung 2.11 finden ausschließlich im Temperaturbereich unterhalb des Minimums statt. Die dielektrische Funktion wird in diesem Bereich durch die resonanten Prozesse bestimmt. Einen großen Beitrag zum resonanten Teil der dielektrischen Funktion liefern Tunnelsysteme, für die $\Delta_0/E \approx 1$ gilt (siehe hierzu (2.50)), weshalb für diese Diskussion für die Asymmetrieenergie $\Delta = 0$ angenommen werden darf.

Im zuvor zitierten Artikel wird der Hamilton-Operator des Tunnelmodells um die Kernquadrupolwechselwirkung durch Hinzunahme zweier Terme H_l und H_r erweitert, welche die Wechselwirkung jedes Kernspins mit den elektrischen Feldgradienten separat in der rechten (r) und der linken Mulde (l) berücksichtigt. Die Wechselwirkungsenergie b ist direkt proportional zum Produkt aus dem Kernquadrupolmoment Q und dem elektrischen Feldgradienten, $b = Q |\nabla E_{\text{EF}}|$. Sind an der Tunnelbewegung simultan n Kernspins beteiligt, so lassen sich durch Vergleich der Parameter Δ_0 und nb verschiedene Regimes angeben, in welchen die dielektrische Funktion von unterschiedlichen Mechanismen dominiert wird.

Gilt $\Delta_0 > nb$, so ist die Kernquadrupolwechselwirkung zu vernachlässigen und das betrachtete Tunnelsystem trägt wie gehabt zur dielektrischen Funktion des Glases bei. Gilt hingegen $\Delta_0 < nb$, so ist die Kopplung zwischen den Quadrupolmomenten und dem elektrischen Feldgradienten dominant und es kommt zu Abweichungen vom Tunnelmodell. In diesem Fall ist der Grundzustand des Systems eine Überlagerung der Grundzustände des Hamilton-Operators der Kernquadrupolwechselwirkung in der linken und rechten Mulde. Diese sind in der Regel verschieden, weshalb sich das Teilchen nach einem Tunnelprozess nicht mehr in einem reinen Zustand bezüglich des Hamiltonians der Quadrupolwechselwirkung befindet. Mithilfe des Überlappintegrals $\eta = \langle l|r \rangle$ der Grundzustandswellenfunktionen des Kernspins $|l\rangle$ und $|r\rangle$ in den beiden Mulden macht der zitierte Artikel die Annahme, dass es zu einer effektiven Tunnelaufspaltung $\Delta_{0*} = \eta^n \Delta_0$ kommt, welche die Niveaus der linken und rechten Mulde koppelt. Sind die Zustände der Operatoren H_l und H_r identisch, unterscheiden sich die Wellenfunktionen $|l\rangle$ und $|r\rangle$ nicht, sodass Quadrupolmomente keinen Einfluss auf die dielektrische Funktion ausüben.

Mit der Umverteilung des Tunnelparameters

$$\Delta_{0^*} = \begin{cases} \Delta_0 & \Delta_0 \gg nb, \\ \Delta_0 \eta^n & \Delta_0 \ll nb \end{cases} \quad (2.63)$$

folgt eine Lücke in der Verteilung

$$P(\Delta_{0^*}) = \begin{cases} \frac{P}{\Delta_{0^*}} & \Delta_{0^*} \gg nb, \\ 0 & nb\eta^n \ll \Delta_{0^*} \ll nb, \\ \frac{P}{\Delta_{0^*}} & \Delta_{0^*} \ll nb\eta^n. \end{cases} \quad (2.64)$$

Diese Verteilung ist in Abbildung 2.17, normiert auf die Verteilung ohne Einflüsse der Quadrupolmomente der Kerne, dargestellt. In Abhängigkeit von der Temperatur ergeben

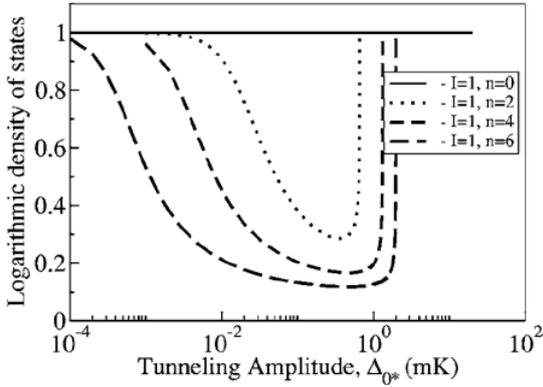


Abb. 2.17: Bild der Lücke der Verteilung $P(\Delta_{0^*})$ für den Kernspin $I = 1$ sowie eine unterschiedliche Anzahl n von tunnelnden Atomen. Der Fall $n = 0$ entspricht der Verteilung ohne Einflüsse der Kernquadrupolmomente. Bild aus [Bur06].

sich für die dielektrische Funktion drei Bereiche.

Gilt $T > nb$, so stimmen die Vorhersagen des Tunnelmodells mit dem Experiment überein.

Im Bereich $nb\eta^n < T < nb$ gibt es keine Tunnelsysteme mit $T \approx \Delta_0$, weshalb die dielektrische Funktion einen temperaturunabhängigen Wert annehmen muss.

Erreicht man den Temperaturbereich $T < nb\eta^n$ erhält man eine Abhängigkeit ähnlich der aus (2.59), jedoch verringert um einen Faktor

$$\frac{2}{3} \frac{\bar{P} p_0^2}{\epsilon_0 \epsilon'} n \ln(1/\eta), \quad (2.65)$$

welcher das Mitteln über eine neue Verteilung der Tunnelaufspaltung Δ_{0^*} berücksichtigt.

2.4.3 Effekte eines externen magnetischen Feldes

Mit dem Spin der Kerne ist ein magnetisches Moment verbunden, welches mit einem externen Magnetfeld wechselwirken kann. Hiermit ist auch eine Umorientierung der Quadrupolmomente der Kerne verbunden, was die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feldgradienten beeinflusst. Ist das Magnetfeld genügend stark, so werden die Quantisierungsachsen der Kernquadrupolmomente in beiden Mulden durch das Magnetfeld dominiert,

sodass für das Überlappintegral $\eta = \langle l|r \rangle \rightarrow 1$ folgt. Dies bedeutet, dass die Lücke in der Verteilungsfunktion $P(\Delta_0^*)$ verschwindet (siehe (2.64)) und die dielektrische Funktion dem Tunnelmodell folgt. Abbildung 2.18 zeigt die Abhängigkeit der dielektrischen Funk-

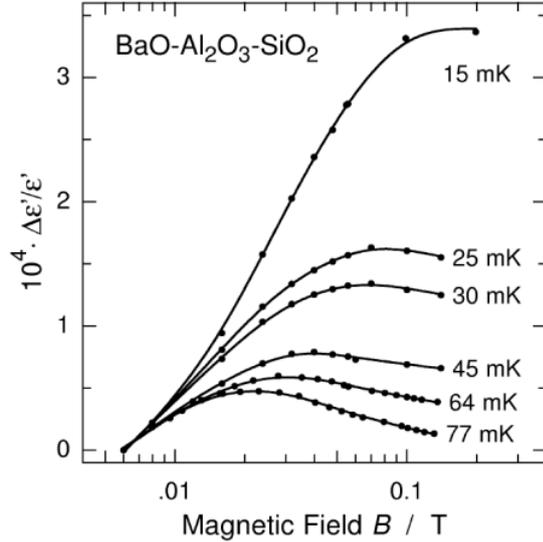


Abb. 2.18: Relative Änderung des Realteils der dielektrischen Funktion von a-BaO-Al₂O₃-SiO₂ bei verschiedenen Temperaturen im Magnetfeld bis 200mT. Die stärkste Abhängigkeit von magnetischen Feldern zeigt die Messung bei der tiefsten Temperatur, was durch die Lücke in der Verteilung $P(\Delta_{0*})$ in (2.64) erklärt werden könnte.

tion eines Multikomponentenglases von einem angelegten Magnetfeld bei unterschiedlichen Temperaturen [Str00]. Je niedriger die Temperatur der Probe gewählt wurde, desto stärker ist die Abhängigkeit vom magnetischen Feld. Dieses Verhalten passt zur obigen Erklärung, da bei tieferen Temperaturen aufgrund der Lücke in der Verteilung (2.64) der Beitrag zur dielektrischen Funktion von immer mehr Tunnelsystemen, im Vergleich zum Tunnelmodell, fehlt. Aus diesem Grund kann ein immer größerer Beitrag durch Anlegen eines magnetischen Feldes bei tieferen Temperaturen zurückgewonnen werden.

3. Experimentelle Methoden

3.1 Erzeugung und Messung tiefer Temperaturen

Messungen zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion wurden in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostat bei sehr tiefen Temperaturen durchgeführt. Das Funktionsprinzip und die Eigenschaften von Verdünnungskryostaten sind ausführlich in der Literatur beschrieben [Ens05, Pob07].

Der Probenhalter wurde an der Mischkammer befestigt, welche den kältesten Bereich im Kryostaten darstellt. Die tiefsten erreichten Temperaturen lagen bei ungefähr 6 mK. Zur Messung der Temperatur im Bereich von 300 K bis 1 K wurde ein RhFe-Thermometer, von 1 K bis zu Temperaturen von einigen Millikelvin ein Kohlethermometer verwendet. Bei beiden Thermometern wird der elektrische Widerstand des jeweiligen Materials gemessen und über eine Eich-tabelle die Temperatur bestimmt. Die Eigenschaften des verwendeten Kohlethermometers sind in [Wei95] ausführlich beschrieben und sollen an dieser Stelle nicht wiederholt werden.

3.2 Versuchsaufbau

Einer der experimentellen Schwerpunkte dieser Arbeit war es, einen vorhandenen Aufbau zur Messung der dielektrischen Funktion in Bezug auf seine thermischen Eigenschaften zu charakterisieren und zu verbessern. Dieser Probenhalter wird in diesem Abschnitt vorgestellt. Da die erwarteten Effekte aufgrund der Kernquadrupole (siehe Kapitel 2.4.2) sehr klein sind, war eine Zielsetzung dieses Aufbaus die zu messende Kapazität zu maximieren. Dies sollte die gesuchten Effekte vergrößern und gleichzeitig die relativen Messfehler minimieren.

3.2.1 Aufbau der Kapazität

Durch die Messung der Kapazität und des Verlustwinkels wird die dielektrische Funktion des Probenmaterials gemessen. Der hierfür verwendete Versuchsaufbau ist ein Plattenkondensator, wobei die zu untersuchende Probe als Dielektrikum des Kondensators dient. Für die Kapazität eines Plattenkondensators gilt

$$C = \epsilon\epsilon_0 \frac{A}{d}. \quad (3.1)$$

Um die Kapazität zu maximieren, kann also entweder der Plattenabstand d verringert oder die Fläche des Kondensators A vergrößert werden.

Für beide Parameter können jedoch keine beliebigen Werte verwendet werden. Wählt man den Plattenabstand zu klein, werden die elektrischen Feldstärken bei gegebener Spannung so groß, dass (2.22) nicht erfüllt ist und somit die Felder nicht mehr als Störung behandelt werden können. Desweiteren darf die Fläche des Kondensators nicht zu groß gewählt werden, da der Versuchsaufbau in einen Magneten und der Kondensator in den homogenen Bereich des magnetischen Feldes passen muss (siehe Kapitel 3.3). Die optimale

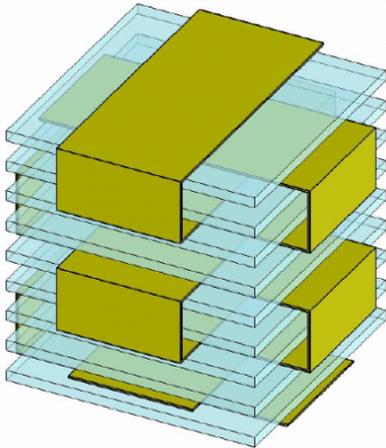


Abb. 3.1: Neun Glasplatten, welche durch Goldfolien kontaktiert werden, bilden das Dielektrikum der Kapazität. Bild aus [Pet08].

Dimensionierung des Dielektrikums ergab sich dabei zu $V = 12 \times 12 \times 0,5 \text{ mm}^3$. Ein leerer Kondensator mit diesen Abmessungen besitzt eine Kapazität von $C_0 = 2,55 \text{ pF}$. Um die Kapazität zu erhöhen, wurden schließlich neun Glasplatten zu einem Stapel angeordnet und mittels zweier Goldfolien, welche in verschiedenen Richtungen durch den Stapel gewickelt werden, zu einer Parallelschaltung kontaktiert. Eine schematische Darstellung des Stapels ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Dicke der Goldfolie beträgt etwa $35 \mu\text{m}$. Um die gesamte Fläche der Glasplatten zu nutzen, wurde beidseitig eine 800 nm dicke Kupfer- und anschließend eine 200 nm dicke Goldschicht aufgebracht¹. Die Kupferschicht dient einerseits als Haftvermittler für das Gold und andererseits zur elektrischen und thermischen Kontaktierung. Gold kam zur Verwendung, da es ebenfalls selbst bei tiefen Temperaturen normalleitend ist und somit magnetische Felder nicht verdrängt. Zusätzlich ist Gold sehr korrosionsbeständig, was sehr wichtig für den elektrischen und den thermischen Kontakt zwischen Glasprobe und Goldfolie ist.

Gefüllt mit einem Dielektrikum besitzt der Aufbau eine Gesamtkapazität von

$$C = 9\epsilon_r C_0 = \epsilon_r 22,94 \text{ pF}. \quad (3.2)$$

Viele Gläser haben eine relative Permittivität in der Größenordnung von $\epsilon_r = 5$, was in diesem Aufbau zu einer Gesamtkapazität von $C \approx 100 \text{ pF}$ führt.

¹Durch Kathodenzerstäubung.

3.2.2 Aufbau des Probenhalters

Um den im vorherigen Kapitel beschriebenen Glasplattenstapel zu untersuchen, benötigt man einen Probenhalter, der verschiedene Anforderungen erfüllt. Die Goldfolien des Plattenstapels müssen hierbei sowohl elektrisch kontaktiert als auch galvanisch von der Masse des Kryostaten getrennt sein. Zusätzlich muss eine möglichst gute thermische Ankopplung der Probe an die Experimentierplattform des Kryostaten gewährleistet werden.

Abbildung 3.2 zeigt eine Zeichnung des in dieser Arbeit verwendeten Probenhalters. Zur elektrischen Kontaktierung ist der Glasplattenstapel so gewickelt, dass die beiden Pole des Kondensators an zwei gegenüberliegenden Seiten des Stapels zu erreichen sind. Ein Stempel drückt den Glasplattenstapel gegen einen Käfig, die jeweils eine Goldfolie des Kondensators kontaktieren. Der Stempel und der Käfig bestehen aus Kupfer. Um zu verhindern, dass aufgrund von unterschiedlicher thermischer Ausdehnung die elektrische Kontaktierung verloren geht oder die Probe bricht, läuft der elektrische Kontakt des Käfigs zusätzlich über einen Turm aus CuBe-Tellerfedern, welcher den Glasplattenstapel gegen den Stempel drückt und somit die Kontaktierung sicherstellt. Um den Käfig und

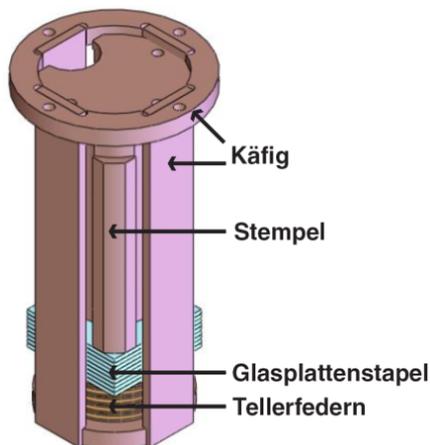


Abb. 3.2: Kontaktierung des Glasplattenstapels. Stempel (**innen**) und Käfig (**außen**) stellen die Pole der Kapazität dar. Zusätzlich ist der Turm aus CuBe-Federn abgebildet, welcher bei verschiedenen Temperaturen für gleichmäßige Kontaktierung sorgen soll. Käfig und Stempel sind voneinander sowie von der elektrischen Masse des Kryostaten isoliert.

den Stempel elektrisch voneinander sowie vom Kryostaten zu isolieren, wurde innerhalb des Versuchsaufbaus ein Topf aus Epoxidharz² in den Deckel des Versuchsaufbaus eingeklebt. An diesem werden sowohl Stempel als auch Käfig befestigt. In Abbildung 3.3 ist der gesamte Probenhalter als Explosionszeichnung abgebildet. Die Kontaktierung an die Messbrücke geschieht mittels SMA-Buchsen, welche auf dem Deckel befestigt sind. Der Deckel wird auf einen zylindrischen Kupfertopf gesetzt und mit diesem mithilfe eines Edelstahlringes verschraubt. Bis auf die CuBe-Federn, den Topf aus Epoxidharz und den Edelstahlring, der aufgrund der geringeren thermischen Expansion für einen erhöhten Anpressdruck zwischen Deckel und Kupfertopf sorgt, besteht der Probenhalter vollständig aus Kupfer. Dies berücksichtigt die Forderung, dass angelegte Magnetfelder möglichst ungestört die Probe erreichen sollen, da Kupfer im untersuchten Temperaturbereich nahezu unmagnetisch ist. Eine Messung des Aufbaus inklusive aller Zuleitungen nach Entfernen

²Stycast 1266, hergestellt von Emerson&Cuming.

des Plattenstapels ergab eine Kapazität von

$$C_{\text{parasit}} = 7,1 \text{ pF}. \quad (3.3)$$

Da fast die komplette Fläche der Probe zur elektrischen Kontaktierung dient, steht für die Wärmeleitung zwischen der Probe und dem Wärmebad des Kryostaten kein elektronischer Weg neben den elektrischen Zuleitungen zur Verfügung. Dies stellt eine große Beschrän-

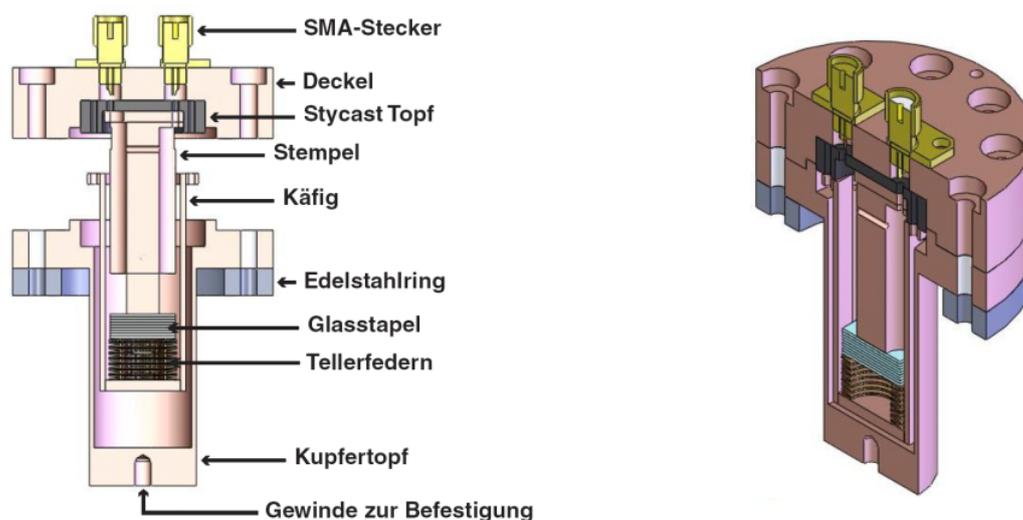


Abb. 3.3: Explosionsansicht (**links**) und isometrische Ansicht (**rechts**) des verwendeten Probenhalters.

kung für den Fluss der Wärme aus der Probe dar. Um den Glasplattenstapel dennoch auf sehr tiefe Temperaturen zu kühlen, wurde bei der Konstruktion des Probenhalters vorgesehen, das Volumen innerhalb des Kupfertopfes mit ^3He zu befüllen. Das ^3He -Bad stellt einen thermischen Kontakt vom Wärmebad des Kryostaten zum Kupferstempel und der Probe dar. Um diese Kopplung weiter zu verbessern, kann am Kupferstempel zusätzlich ein Silber-Sinter-Körper angebracht werden. Dies vergrößert die zur Thermalisierung verfügbare Fläche und verringert den Kapitza-Widerstand zwischen flüssigem ^3He und dem Stempel.

Leider konnte in dieser Arbeit der Versuchsaufbau nicht mit ^3He geflutet werden. Auf die damit zusammenhängenden Probleme wird bei der Diskussion der Messwerte in Kapitel 4 eingegangen. Es ist jedoch unklar, ob das Fluten des Versuchsaufbaus mit ^3He die aufgetretenen Probleme beseitigt. Zusätzlich wird dort ein neuer Versuchsaufbau, welcher eine verbesserte thermische Kopplung zwischen Probe und der Experimentierplattform des Kryostaten auch ohne die Verwendung von flüssigem ^3He besitzt, vorgestellt.

3.3 Erzeugung magnetischer Felder

Die Bedingungen, die an den Magneten zur Messung der dielektrischen Funktion in Abhängigkeit eines magnetischen Feldes gestellt wurden, waren einerseits die Erzeugung eines möglichst homogenen Feldes und andererseits die Verwendung von supraleitenden Drähten, um den Wärmeeintrag durch den Strom, der das Magnetfeld erzeugt, möglichst klein zu halten.

Zur Verwendung kam schließlich eine Helmholtz-Anordnung auf einem Messingkörper mit einer Bohrung mit 20 mm Durchmesser, bei der sich zwei Spulen im Abstand von $d = 14,6\text{ mm}$ gegenüber stehen. Die Spulen besitzen einen mittleren Radius von $R = 15\text{ mm}$ und bestehen aus einem NbTi/Cu-Draht mit einem Durchmesser von $70\ \mu\text{m}$, welcher unterhalb von $9,8\text{ K}$ supraleitend wird. Beide Spulen besitzen etwa $n = 4400$ Windungen und der Widerstand des Drahtes beträgt bei Raumtemperatur $R = 5,54\text{ k}\Omega$. Unter Verwendung dieser Daten wurde eine Simulation erstellt, welche die Induktivität der Spule sowie Feldverteilungen an beliebigen Orten im Inneren des Körpers berechnen kann. Die

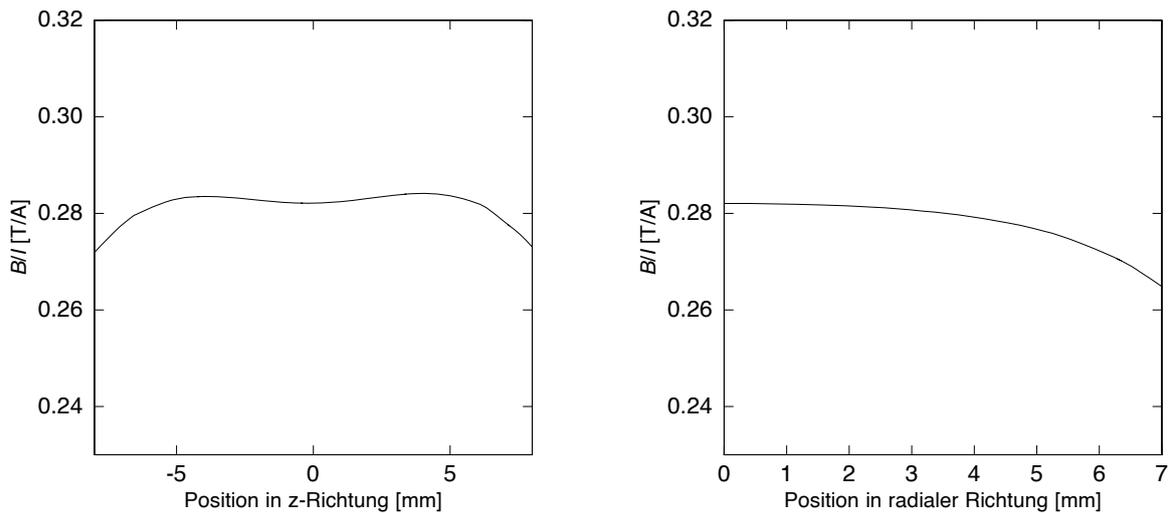


Abb. 3.4: Im Magneten erzeugtes magnetisches Feld pro eingespeistem Strom aufgetragen gegen **(links)**: die Position auf der Symmetrieachse im Inneren des Magneten bei $r = 0$, **(rechts)**: entlang der radialen Richtung ausgehend vom Zentrum der Spule bei $z = 0$. Im Bereich $|z| < 6\text{ mm}$, $r \leq 6\text{ mm}$ kann von einem homogenen Magnetfeld ausgegangen werden.

Simulation wurde durchgeführt mit dem Finite Elemente Programm FEMM³.

Als Induktivität der Spule ergab sich $L = 1,037\text{ H}$. Die Feldverteilung entlang der Symmetrieachse der Spule sowie in radialer Richtung ist in Abbildung 3.4 aufgetragen.

³Finite Element Method Magnetics, <http://femm.foster-miller.net/>

Die verwendeten Probenhalter werden in den Magneten eingeführt und dort mit der Experimentierplattform des Kryostaten verschraubt.

Die Dimensionierung des Magneten legt den Ausmaßen des Probenhalters Schranken auf, sie dürfen im Durchmesser nicht größer als 20 mm sein. Um die Auswertung der Daten zu erleichtern, muss außerdem darauf geachtet werden, dass sich die gesamte Probe im Bereich des homogenen Magnetfelds befindet.

3.4 Proben

In den hier diskutierten Messungen wurden die Mehrkomponentengläser BK7 und N-KZFS11 der Schott AG⁴ untersucht. Optische Gläser werden typischerweise anhand der Abbeschen Zahl ν_e sowie Brechzahlen bei verschiedenen Wellenlängen charakterisiert. Anhand dieser Parameter werden zwei Gläsertypen, die Krongläser und die Flintgläser, unterschieden. Tabelle 3.4 zeigt die wichtigsten Parameter für die dielektrische Funktion der

Größe	BK7	N-KZFS11	Einheit
ρ	2510 ^a	3200 ^a	kg/m ³
T_g	557 ^a	551 ^a	°C
$\bar{P}p_0^2$	1,28 ^b	-	10 ⁻¹³ CJ ⁻¹ m ⁻²
ϵ_r	5,6 ^b	8,0 ^c	
v_l	6000 ^b	-	m/s
v_t	3800 ^b	-	m/s
γ_l	0,87 ^b	-	eV
γ_t	0,64 ^b	-	eV

Tab. 3.1: Physikalische Eigenschaften der Gläser für BK7 und N-KZFS11. Angegeben sind Werte für ρ : Dichte, T_g : Glasübergangstemperatur, v_l, v_t : longitudinale und transversale Schallgeschwindigkeit, γ_l, γ_t : Kopplungskonstanten für longitudinale und transversale Phononenzweige. Der Parameter $\bar{P}p_0^2$ setzt sich zusammen aus dem Dipolmoment p_0 der tunnelnden Teilchen sowie dem Parameter \bar{P} aus der Verteilung der Tunnelsysteme (2.19). Die Angaben wurden folgenden Arbeiten entnommen: a [AG08], b [Woh01] und c diese Arbeit.

beiden Festkörper.

Mit einer hohen Abbeschen Zahl von $\nu_e = 64$ und einem kleinen Brechungsindex von $n = 1,52$ zählt BK7 zu den Krongläsern. Die Hauptbestandteile dieses Glases sind die Oxide B_2O_3 und SiO_2 , welche als Netzwerkbildner dienen. B_2O_3 erniedrigt den Wärmeausdehnungskoeffizienten und erhöht die Festigkeit im Vergleich zu reinem SiO_2 . Zusätzlich werden kleine Mengen von Na_2O und Ka_2O beigemischt. Zu diesem Glas existiert eine

⁴SCHOTT AG, Hattenbergstr. 10, 55122 Mainz

Reihe von Messungen der dielektrischen Funktion, welche mit den Messungen dieser Arbeit verglichen werden können.

N-KZFS11 besitzt im Gegensatz zu BK7 eine kleine Abbesche Zahl $\nu_e = 42,2$ sowie einen großen Brechungsindex $n = 1,64$, weshalb es zu den Flintgläsern gezählt wird. Der besondere Wert dieses Glases liegt für diese Arbeit in der chemischen Zusammensetzung. Neben den Oxiden B_2O_3 , ZrO_2 und Na_2O besitzt das Glas auch zu etwa 25 Massenprozent das Oxid Ta_2O_3 . Das Isotop ^{181}Ta besitzt ein sehr großes Kernquadrupolmoment und sämtliche Oxide des Glases N-KZFS11 sind diamagnetisch. Dies macht diese Substanz zur idealen Probe, um die Abhängigkeit der dielektrischen Funktion der Quadrupolmomente der Kerne und magnetischen Feldern zu untersuchen. Außerdem kann erwartet werden, dass Abweichungen vom Tunnelmodell aufgrund der vergleichsweise großen Kernquadrupolmomente zu höheren Temperaturen verschoben werden. Die Tabelle 3.4 gibt einen Überblick über die Quadrupolmomente der verschiedenen Atomkerne der untersuchten Gläser.

Atomkern	NH [%]	I	Q [barn]
1H	99,99	1/2	0
2H	0,01	1	0,00286
^{12}C	98,92	0	0
^{11}B	80,09	3/2	0,041
^{16}O	99,76	0	0
^{23}Na	100	3/2	0,104
^{27}Al	100	5/2	0,147
^{29}Si	4,67	1/2	0
^{39}K	93,26	3/2	0,0585
^{135}Ba	6,59	3/2	0,160
^{181}Ta	99,99	7/2	3,3

Tab. 3.2: Anteil in der natürlichen Isotopenzusammensetzung NH , Kernspin I und Kernquadrupolmoment Q einiger Isotope, die in den untersuchten Gläsern vorkommen.

3.5 Messung der dielektrischen Funktion

3.5.1 Die Meßgrößen

Die Messgrößen der vorliegenden Arbeit sind einerseits die Kapazität und andererseits der Verlustwinkel der Probe. Sie stehen mit Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion (siehe Kapitel 2.2.7) in folgendem Zusammenhang

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{\Delta \epsilon'}{\epsilon'} \simeq \frac{\text{Re } \delta \epsilon}{\epsilon'} \quad \text{und} \quad (3.4)$$

$$\Delta \tan \delta = \frac{\Delta \epsilon''}{\epsilon'} \simeq \frac{\text{Im } \delta \epsilon}{\epsilon'}. \quad (3.5)$$

Über diese Gleichungen können Aussagen über die dielektrische Funktion der untersuchten Proben getroffen werden.

Sämtliche Messdaten wurden mit einer Kapazitätsmessbrücke mit eingebautem Referenzkondensator und Referenzwiderstand aufgenommen⁵. Im Folgenden soll die prinzipielle Funktionsweise der Messbrücke erklärt werden.

3.5.2 Erfassung der Messdaten

Ein Prinzip-Schaltbild der verwendeten Kapazitätsmessbrücke ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Der Generator auf der linken Seite des Bildes liefert eine sinusförmige Wechselspannung mit Frequenzen von 50 Hz bis 20 kHz in diskreten Schritten und einer Amplitude U_{exc} von 1 mV bis 15 V. Die Spannung liegt an einem Transformator an, welcher über zwei einstellbare Abgriffe die transformierte Spannung der eigentlichen Brückenschaltung über die Zweige 1 und 2 zuführt. In Zweig 3 befindet sich eine ebenfalls verstellbare Referenzimpedanz $R_0 + 1/i\omega C_0$, gegen die die zu messende Probe in Zweig 4 abgeglichen wird. Wird

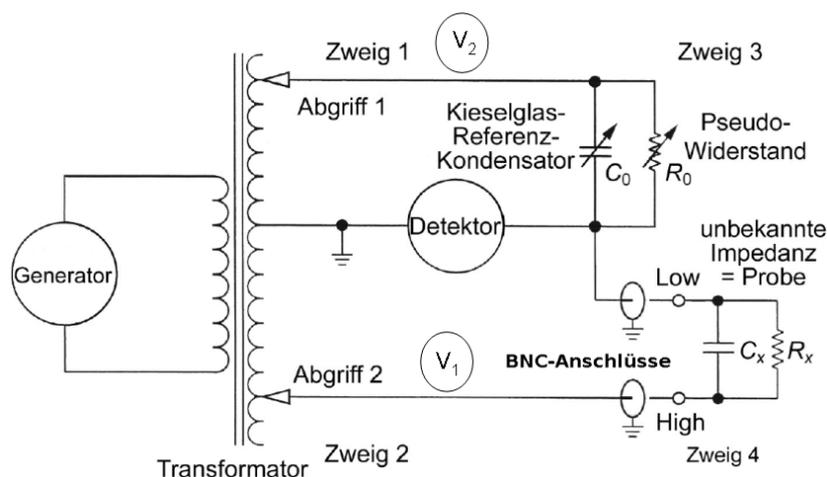


Abb. 3.5: Schematisches Schaltbild der verwendeten Messbrücke. Der Referenzstromkreis in Zweig 3 des Bildes sowie die Spannungen V_1 und V_2 werden so lange variiert, bis sich im Detektor ein minimaler Stromfluss einstellt. Unter dieser Bedingung können die unbekannte Kapazität C_x sowie der unbekannte Verlustwinkel $\tan \delta$ aus dem Widerstand R_x in Zweig 4 bestimmt werden. Abbildung aus [And04].

eine Messung vorgenommen, variiert die Brücke solange die Spannungsabgriffe 1 und 2 sowie die Referenzimpedanz C_0 und R_0 , bis der Detektor einen minimalen Stromfluss detektiert. Der Detektor kann bezüglich der angelegten Wechselspannung gleichphasige und

⁵Kapazitätsmessbrücke AH2700A der Firma Andeen-Hagerling

um $\pi/2$ -phasenverschobene Spannungsbeiträge trennen und ist somit in der Lage die unbekannte Kapazität C_x und den unbekanntenen Verlustwinkel $\tan \delta$ durch nur eine Messung zu bestimmen. Beim minimalen Stromfluss muss für die Spannungen an Zweig 1 und 2 gelten

$$\frac{V_1}{V_2} = \frac{R_x}{R_0} \quad \text{sowie} \quad \frac{V_1}{V_2} = \frac{C_0}{C_x}. \quad (3.6)$$

Die Messgrößen sind dann

$$C_x = C_0 \frac{V_1}{V_2} \quad \text{sowie} \quad \tan \delta = \frac{1}{\omega C_x R_x} = \frac{1}{\omega C_0 R_0}. \quad (3.7)$$

Die Brücke arbeitet äußerst präzise und ist gleichermaßen stabil. Die Auflösung bei der Messung einer Kapazität mit beispielsweise einer Frequenz von $f = 1$ kHz ist nach den Herstellerangaben kleiner als 0,16 ppm. Dabei driftet der gemessene Wert pro Jahr um nicht mehr als 1 ppm. Unter der Voraussetzung von vollständig abgeschirmten Messleitungen haben Streukapazitäten der Kabel und alle verbauten Stecker keinen Einfluss auf das Messergebnis.

Die Messbrücke bietet eine Vielzahl an Möglichkeiten eine Messung der unbekanntenen Kapazität sowie des Verlustwinkels durchzuführen. Neben der Möglichkeit die Frequenz f und den Spitzenwert der Wechselspannung U_{exc} einzustellen, kann zusätzlich ein Mittelungsalgorithmus für die Messwerte sowie ein Algorithmus zur Vermeidung von Interferenzen des Messsignals mit Frequenzen von Störquellen (wie zum Beispiel durch Netzbrummen) benutzt werden. Zusätzlich lassen sich Parameter der verwendeten Koaxialkabel eingeben, um deren parasitären Effekte auf das Messergebnis zu minimieren. Die genaue Funktionsweise dieser Methoden wird in [And04] ausführlich beschrieben.

Die Messbrücke verfügt über einen GPIB sowie einen seriellen Port, um die Brücke einerseits zu steuern und andererseits die gemessenen Daten auf einen Rechner zu übertragen. Zu diesem Zwecke wurde ein Programm in LabVIEW⁶ für die Kommunikation über den seriellen Port geschrieben, welches zusätzlich in der Lage ist, die wichtigsten Parameter des Kryostaten zu steuern und zu protokollieren. Messbrücke und Kondensator sind durch Koaxialkabel miteinander verbunden. Um zu vermeiden, dass Störsignale seitens des Messrechners die Brücke erreichen, wurde ein Optokoppler in der digitalen Kommunikation zwischen Messbrücke und Messrechner verwendet, welcher die Geräte galvanisch voneinander trennt.

3.6 Experimentelle Probleme

In diesem Abschnitt sollen einige Schwierigkeiten, die mit der Messung in Verbindung stehen, diskutiert werden. Die größte Herausforderung dieser Arbeit war es, die Glasprobe auf die vom Kryostaten vorgegebene Temperatur abzukühlen.

⁶LabVIEW 6.0, von National Instruments, Texas, USA <http://www.ni.com/labview/>

Bei der Durchführung einer Messung ist ein Wärmeeintrag in die Probe unvermeidlich. Die zwei wichtigsten Effekte, welche zu einer Erhöhung der Temperatur der Probe führen, sind einerseits der Transport von Wärme durch die Messleitungen und andererseits dissipative Prozesse bei der Messung in der Probe.

3.6.1 Thermische Isolation der Probe

Da sich die Messbrücke bei etwa 300 K befindet, besteht ein großer Temperaturgradient auf dem Weg zwischen der Brücke und der Probe. Um den damit verbundenen Wärmeeintrag in die Probe zu minimieren, ist die Verwendung von Kabeln mit einer geringen thermischen Leitfähigkeit G ein besonders wichtiges Kriterium. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Kabeltypen verwendet. Zum einen supraleitende semi-rigid Koaxialkabel und zum anderen Minikoaxialkabel⁷ mit einem Außenleiter aus Edelstahlbrahtgeflecht. Die Verwendung der supraleitenden Kabel begründet sich aus der Eigenschaft, dass Materie im supraleitenden Zustand nahezu nur phononischen Wärmetransport besitzen. Das Minikoaxialkabel wurde verwendet, da der Innenleiter mit einem Durchmesser von $d = 200 \mu\text{m}$ sehr klein und aus Edelstahl gefertigt ist. Somit ist, trotz des normalleitenden Zustandes, wegen der geringen spezifischen Leitfähigkeit von Edelstahl und $G \propto d^2$ die Wärmeleitfähigkeit gering. Es konnte nicht festgestellt werden, welches der beiden Kabel die besseren Eigenschaften hinsichtlich der thermischen Isolation besitzt. Diese Frage kann nur eindeutig durch eine Wärmeleitfähigkeitsmessung beantwortet werden.

Neben der Wahl von geeigneten Kabeln muss jedes Kabel auf dem Weg von Raumtemperatur bis zur Temperatur der Mischkammer an jeder zugänglichen Wärmestufe des Kryostaten thermisch angekoppelt werden. Die hierfür verwendeten thermischen Ankopplungen sind in Abbildung 3.6 dargestellt. Sie bestehen aus einer Saphirplatte, auf deren Oberfläche zwei elektrisch leitende Bahnen gedampft wurden. Die Saphirplatte ist in eine vergoldete Kupferbox eingeklebt. Am Kupferkörper befindet sich ein Fuß, welcher mit

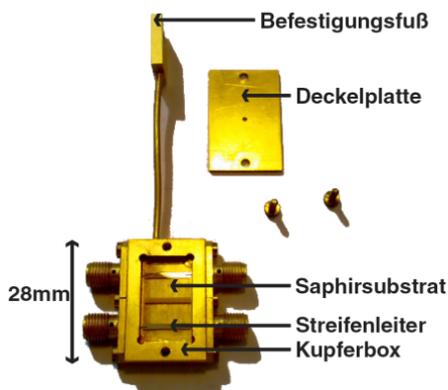


Abb. 3.6: Foto einer thermischen Ankopplung mit aufgedampften Bahnen aus Niob. Die Innenleiter der SMA-Buchsen sind hier mittels eines Bonddrahtes mit den Bahnen verbunden.

⁷Lake Shore, Typ SS⁵, Westerville, Ohio 43082, USA

der jeweiligen Wärmestufe verschraubt wird. Die anzukoppelnden Messleitungen werden über SMA-Buchsen mit der thermischen Ankopplung verbunden, wobei der Innenleiter mit der bedampften Bahn und der Außenleiter mit dem Kupferkörper verbunden wird. Die elektrische Wärmeleitung in Durchgangsrichtung ist aufgrund der geringen spezifischen Leitfähigkeit und der Dicke der Bahn sehr gering, weshalb ein Großteil der Wärme durch die Saphirplatte in den Kryostaten fließt.

3.6.2 Dissipative Prozesse in der Probe

In Analogie zu einem RC-Glied kann die dissipierte Leistung, die beim Treiben der Probe mit einer Wechselspannung entsteht, berechnet werden. Für die dissipierte Leistung finden wir

$$P_{\text{diss}} = \frac{1}{4} C f U_{\text{exc}}^2 \tan \delta, \quad (3.8)$$

wobei f und U_{exc} die Frequenz und die Amplitude der angelegten Wechselspannung sind. Die Amplitude der Anregungsspannung U_{exc} stellt die stärkste Abhängigkeit dar. Die Größenordnung, für die im Glas dissipierte Leistung in Abhängigkeit von der Temperatur, können aus Abbildung 4.10 entnommen werden.

Der Wärmeeintrag aufgrund der Messleitungen sowie die dissipierte Leistung in der Probe führen zu einer Erhöhung der Probentemperatur im Vergleich zur Temperatur des verwendeten Thermometers und verfälschen aufgrunddessen das Messergebnis. Es muss also darauf geachtet werden, dass einerseits Wärmeeinträge effektiv abgeführt und andererseits der Wärmefluss über die Messleitungen möglichst stark begrenzt werden. Diese Problematik wird ausführlich in Kapitel 4.3 diskutiert.

3.6.3 Wärmeeinträge aufgrund von Wirbelströmen

Die Messung der Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von einem externen Magnetfeld liefert einen zusätzlichen Wärmeeintrag. Eine Änderung des magnetischen Feldes induziert in ausgedehnten elektrischen Leitern Spannungen, welche, je nach Geometrie des vom magnetischen Feldes durchsetzten Körpers und dessen Leitfähigkeit, Wirbelströme mit unterschiedlichen Stärken erzeugen. Fließen diese Ströme in Materialien mit einem elektrischen Widerstand $R \neq 0$, so kommt es zu Ohm'schen Verlusten und damit zu einer Erhöhung der Temperatur des Probenhalters und der Probe.

Nach [Pob07] gilt für die durch Wirbelströme erzeugte Leistung in einem Körper des Volumens V

$$\dot{Q}_e = \frac{GV\dot{B}^2}{\rho}, \quad (3.9)$$

wobei ρ der spezifische Widerstand des Leiters, \dot{B} die Änderungsrate des magnetischen Feldes und G ein Geometriefaktor ist. Für diesen gilt

$$G = \begin{cases} r^2/8 & \text{für einen Zylinder mit Radius } r, \\ \frac{a^2}{16} \cdot \frac{1}{1+a^2/b^2} & \text{für ein Rechteck mit Seitenlängen } a \text{ und } b. \end{cases} \quad (3.10)$$

Wir sehen, dass im Vergleich zu zylindersymmetrischen Körpern Wirbelströme bei Körpern mit rechteckigem Querschnitt und stark unterschiedlichen Seitenlängen ($a/b \ll 1$) stark gedämpft werden.

Aufgrund der zylindersymmetrischen Geometrie des verwendeten Aufbaus kommt es zu vergleichsweise großen Strömen, die im Probenhalter induziert werden. Um den Einfluss der damit verbundenen Heizleistung auf die Messung möglichst klein zu halten, wurde das magnetische Feld in sehr kleinen Raten erhöht. Zusätzlich wurde nach Erreichen einer bestimmten Feldstärke gewartet, bis das Driften der Kapazität C aufgrund der Änderung der Proben temperatur in der Größenordnung der Messgenauigkeit lag. Die Wartezeit ist abhängig von der Temperatur, der verwendeten Stromrate, der Schrittgröße ΔI sowie der Stromstärke.

Beispielsweise musste bei einem Strom von $I = 1 \text{ A}$, einer Schrittgröße von $\Delta I = 100 \text{ mA}$, einer Rate von $\dot{I} = 0,1 \text{ mA/s}$ und einer Temperatur von 15 mK ungefähr eine Stunde gewartet werden, um eine nahezu zeitunabhängige Messgröße zu erhalten.

4. Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

In den folgenden Abschnitten wollen wir die theoretischen Voraussagen der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion des Tunnelmodells aus Abschnitt 2.2.7 mit experimentellen Resultaten der untersuchten Proben überprüfen. Zusätzlich werden für das Probenglas BK7 die experimentellen Ergebnisse mit denen anderer Autoren verglichen. Auf die Diskussion von Messdaten der dielektrischen Funktion in Abhängigkeit magnetischer Felder wird verzichtet, da die Glasproben im Tieftemperaturbereich nicht thermalisiert werden konnten. Dieser Sachverhalt wird ausführlich in Abschnitt 4.1.2 diskutiert. Die hieraus resultierenden Unsicherheiten der Probentemperatur, welche durch Wärmeeinträge in die Probe durch Wirbelströme noch verstärkt werden, macht es unmöglich sichere Aussagen über die Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von magnetischen Feldern zu treffen.

Die relative Änderung der Kapazität wird, wenn nicht anders angegeben, relativ zum Minimum der Messdaten $\Delta C/C = (C(T) - C_{\min})/C_{\min}$ aufgetragen. Die Messdaten des Verlustwinkels $\tan \delta$ entsprechen nicht ausschließlich dem Beitrag der Tunnelsysteme. Die Summe aller parasitären Beiträge $\tan \delta_0$ müssen von den Messdaten abgezogen werden, um die Temperaturabhängigkeit des Verlustwinkels der Tunnelsysteme zu erhalten. Diese Korrektur ist besonders wichtig im Tieftemperaturbereich und wird bei den ersten Messungen des Verlustwinkels bei tiefen Temperaturen diskutiert.

Wie Abschnitt 4.1.2 zeigen wird, konnte die Probe nicht auf Temperaturen deutlich unterhalb von $T = 30$ mK gekühlt werden. Dieses Verhalten wird auf die geringe Wärmeleitung zwischen der Probe und der Experimentierplattform zurückgeführt.

Ein weiteres Problem bei der Messung ergab sich durch das nicht-kontinuierliche Füllen des 1K-Topfes im verwendeten Kryostaten. Aufgrund dieser Tatsache kommt es zu

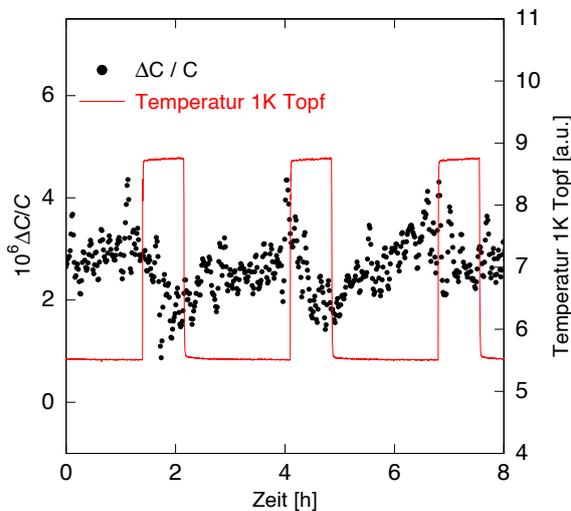


Abb. 4.1: Einfluss des 1K-Topfes auf die relative Änderung der Kapazität. Die abgebildeten Daten wurden bei $T = 7$ mK aufgenommen.

Schwankungen der Temperatur der Experimentierplattform und somit zu periodischen Änderungen der Messgrößen. In Abbildung 4.1 sind die Temperatur des 1K-Topfes sowie die relative Änderung der Kapazität gegen die Zeit aufgetragen. Man erkennt deutlich die Abhängigkeit der beiden Größen, der Einfluss des 1K-Topfes auf die Messdaten ist in der gleichen Größenordnung wie die Streuung der Messwerte. Dieser Zusammenhang reduziert die Genauigkeit einer Messung und ist bei Temperaturen unterhalb von etwa $T = 20$ mK zu beobachten.

4.1 Messung an BK7

Die Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion von BK7 wurde mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Versuchsaufbau gemessen. Zunächst werden Messdaten vorgestellt und mit dem Tunnelmodell verglichen. Anschließend werden die Messdaten mit experimentellen Resultaten anderer Autoren verglichen. Die dabei aufgetragenen Temperaturen entsprechen der Temperatur der Experimentierplattform, da an der Probe selbst kein Thermometer angebracht war.

4.1.1 Messungen im Nullfeld

Abbildung 4.2 zeigt die Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung der Kapazität $\Delta C/C$ sowie des Verlustwinkels $\tan \delta$ im Bereich von Raumtemperatur bis zu einigen Millikelvin. Das Tieftemperaturverhalten der dielektrischen Funktion ist qualitativ mit den Voraussagen des Tunnelmodells (2.60) vergleichbar. Zur besseren Darstellung wurden beide Diagramme doppellogarithmisch aufgetragen. Betrachtet man die relative Kapazitätsänderung von tiefen Temperaturen kommend, so fällt diese aufgrund der Abnahme der resonanten Prozesse logarithmisch ab. Bei ungefähr 100 mK gewinnen Relaxationsprozesse an Bedeutung, so dass die relative Änderung der Kapazität ein Minimum durchläuft, und von dort logarithmisch ansteigt. Bei Temperaturen von einigen Kelvin gewinnen Mehrphononenprozesse sowie thermisch aktivierte Prozesse an Bedeutung, was sich in einem stärkeren Anstieg der Messwerte der Kapazität bemerkbar macht.

Der Verlustwinkel steigt von tiefen Temperaturen kommend aufgrund der zunehmenden Relaxationsprozesse an, und mündet bei ungefähr 300 mK in ein Plateau. Bei Temperaturen von ungefähr 10 K gewinnen thermisch aktivierte Prozesse an Bedeutung, weshalb der Verlustwinkel wieder ansteigt.

In Abbildung 4.3 ist das Tieftemperaturverhalten der dielektrischen Funktion für verschiedene Anregungsfrequenzen f aufgetragen. Mit einer Erhöhung der Frequenz ist deutlich die Verschiebung der Minima der relativen Änderung der Kapazität zu höheren Temperaturen zu erkennen. Die Minima der Temperaturabhängigkeit werden erzeugt durch das Eintreten von Relaxationsprozessen. Je größer die Frequenz der äußeren Störung gewählt wird, umso schneller müssen Tunnelsysteme zum Gleichgewichtswert der Besetzungszahl-

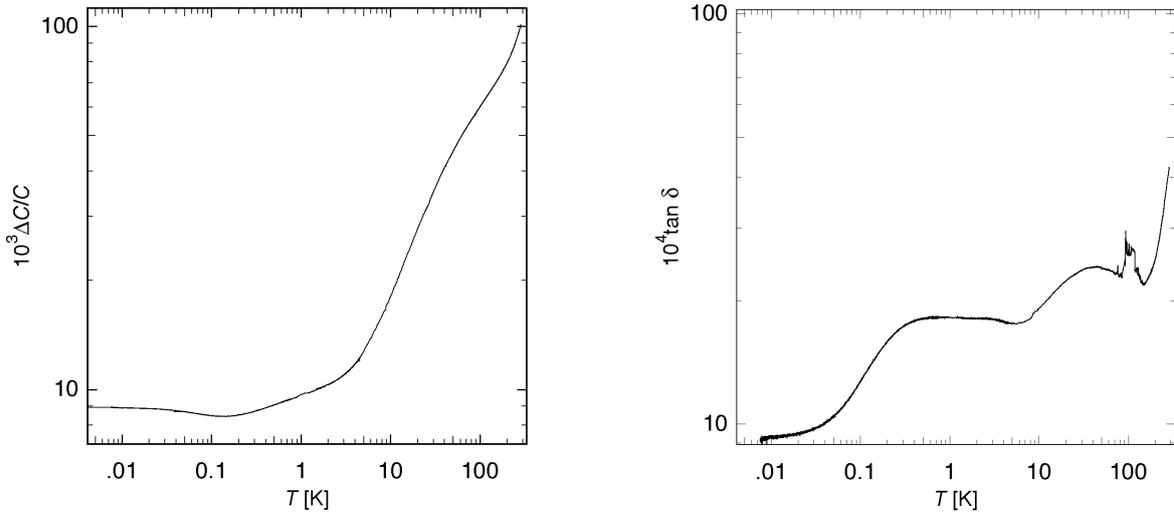


Abb. 4.2: (Links): Relative Änderung der Kapazität $\Delta C/C$ und (rechts): der Verlustwinkel $\tan \delta$. Die relative Kapazitätsänderung bezieht sich auf den Wert $C_0 = 126$ pF, der Verlustwinkel wurde nicht korrigiert. Es wurde bei $f = 10$ kHz und $U_{\text{exc}} = 50$ mV im Temperaturbereich $5 \text{ mK} < T < 300 \text{ K}$ gemessen.

differenz relaxieren können (vergleiche Abbildung 2.9) um zur dielektrischen Funktion beitragen zu können. Mit steigender Temperatur wächst die Relaxationsrate an und immer mehr Tunnelsysteme sind in der Lage der äußeren Störung zu folgen. Dieses Verhalten wird durch das Tunnelmodell in (2.62) vorausgesagt. Die Messdaten zeigen außerdem im Tieftemperaturbereich ein Abflachen der relativen Kapazitätsänderung. Dieses Verhalten wird nicht von Tunnelmodell vorausgesagt und lässt sich auch nicht in Messungen anderer Autoren finden. Es wurde zwar ein Abflachen der relativen Kapazitätsänderung in BK7 gefunden [Rog97], jedoch zeigen sich diese Abweichungen vom Tunnelmodell erst bei deutlich tieferen Temperaturen. Auf dieses Verhalten wird ausführlich in Abschnitt 4.1.2 eingegangen.

Um bei der Messung des Verlustwinkels $\tan \delta$ ausschließlich den Beitrag der Tunnelsysteme zu diskutieren, müssen parasitäre Beiträge von den Messdaten abgezogen werden, welche beispielsweise von Kabeln oder dem Probenhalter verursacht werden.

Exakt kann dies nur durch eine Leermessung des Kondensators ohne Probe im interessierenden Temperaturbereich getan werden. Da eine solche Messung jedoch vom verwendeten Versuchsaufbau nicht vorliegt und auch nur schwer durchführbar wäre, könnte man daran denken, als Näherung dieser Korrektur die Extrapolation des gemessenen Verlustwinkels zu $T \rightarrow 0$ zu verwenden, da dort der Beitrag der Tunnelsysteme verschwindet. Aufgrund eines Temperaturgradienten zwischen Experimentierplattform und Probe kann für die Daten dieser Arbeit auch dieser Wert nicht verwendet werden (siehe hierzu Abschnitt

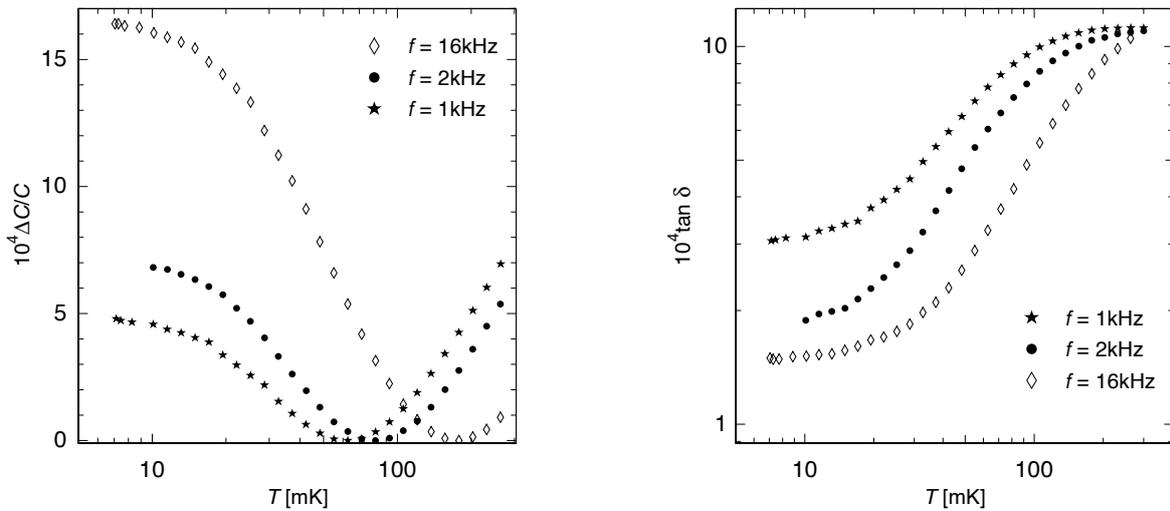


Abb. 4.3: Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung der Kapazität sowie des Verlustwinkels bei verschiedenen Frequenzen. Die Anregungsspannung betrug während der Messung $U_{\text{exc}} = 30 \text{ mV}$. (**Links**): Mit zunehmender Frequenz werden die Minima der Kurven zu höheren Temperaturen geschoben. (**Rechts**): Mit zunehmender Frequenz werden die Verluste im Tieftemperaturbereich kleiner.

4.1.2 und 4.3). Um trotzdem den Verlustwinkel auf den Beitrag der Tunnelsysteme zu untersuchen, wird dieser im Plateaubereich (siehe (2.61)) an die Werte anderer Autoren angepasst.

Typische Korrekturen liegen im Bereich von $\tan \delta_0 = 1 \cdot 10^{-4}$. Dieser Wert kann durch eine Messung des Versuchsaufbaus ohne Probe bei Raumtemperatur bestätigt werden. Bei einer parasitären, von der Brücke gemessenen Kapazität von $C_{\text{parasit}} = 7,1 \text{ pF}$ erhält man einen Verlustwinkel von $\tan \delta_{\text{parasit}} = 3,7 \cdot 10^{-3}$. Umgerechnet auf die Kapazität des Versuchsaufbaus mit eingebauter Probe $C_{\text{voll}} = 139,9 \text{ pF}$ mit jedoch den gleichen Verlusten, ergibt sich eine Korrektur von $\tan \delta_0 = \tan \delta_{\text{parasit}} \cdot C_{\text{parasit}}/C_{\text{voll}} = 1,9 \cdot 10^{-4}$. Der Wert dieser groben Abschätzung liegt nahe an den benötigten Korrekturen, um den Verlustwinkel auf den Wert des Plateaus anzupassen. Um die Abschätzung zu verbessern, kann eine Kapazität mit $C = C_{\text{voll}}$ in den Probenhalter eingebaut werden, welche aber keine Verluste aufweist. Eine Messung des Verlustwinkels dieses Aufbaus würde eine bessere Näherung der benötigten Korrekturen darstellen. Probleme bei der Korrektur ergeben sich durch die Tatsache, dass das Plateau des Verlustwinkels, entgegen der Voraussage des Tunnelmodells, von der Frequenz und der Temperatur abhängig ist [Pet08, Bec90]. Nicht für jede Messfrequenz dieser Arbeit ist der von den Tunnelsystemen herrührende Verlustwinkel im Bereich des Plateaus bekannt. Da vor allem im Tieftemperaturbereich der interessierende Beitrag zum Verlustwinkel der Tunnelsysteme sehr sensitiv auf Korrekturen reagiert, wird eine Diskussion der gemessenen Daten sehr erschwert.

Die Abhängigkeit des Verlustwinkels von der Anregungsfrequenz im rechten Teil der Abbildung 4.3 entspricht bei Temperaturen von $T > 100$ mK qualitativ der Voraussage des Tunnelmodells nach (2.61). Im Tieftemperaturbereich werden mit zunehmender Frequenz die Verluste kleiner. Bei höheren Temperaturen flacht der Verlustwinkel ab und mündet in ein nahezu frequenzunabhängiges Plateau. Im Tieftemperaturbereich wird nach dem Tunnelmodell ein Anstieg proportional zu T^3 erwartet. Diese Voraussage kann nicht bestätigt werden, da der gezeigte Anstieg der Messwerte die gleiche Ursache wie das Abflachen der relativen Kapazitätsänderung besitzt. Auch dieses Verhalten wird ausführlich in Ab-

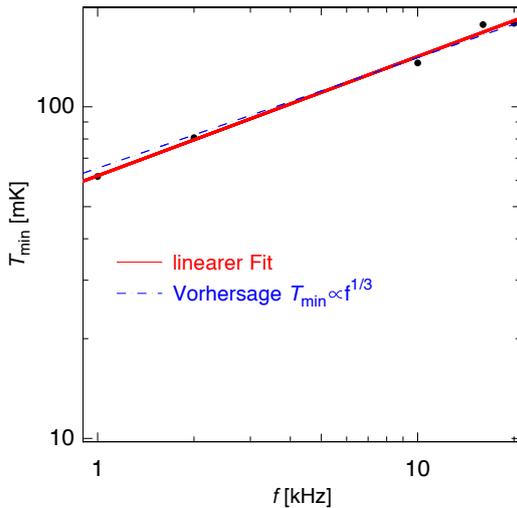


Abb. 4.4: Die Temperaturen der Minima aus Abbildung 4.3 sowie aus weiteren, nicht abgebildeten Messungen aufgetragen gegen die Messfrequenz. Für den Zusammenhang zwischen beiden Größen wird vom Tunnelmodell $T_{\min} \propto f^{1/3}$ vorausgesagt. Die Abweichung des Exponenten von der Vorhersage beträgt 9 %.

schnitt 4.1.2 behandelt.

Die dargestellten Verlustwinkel mit einer Anregungsfrequenz von $f = 16$ kHz können mit einer größeren Unsicherheit behaftet sein und geben nicht ausschließlich den Beitrag der Tunnelsysteme an, da bei dieser Frequenz kein Referenzwert aus der Literatur im Plateaubereich vorliegt und deshalb die erforderliche Korrektur nur aus Messungen bei anderen Anregungsfrequenzen abgeschätzt werden kann.

In Abbildung 4.4 sind die Temperaturen T_{\min} , bei denen die Minima des Realteils der dielektrischen Funktion, Abbildung 4.3 links, zu finden sind, gegen die Anregungsfrequenz aufgetragen. Das Tunnelmodell sagt eine Abhängigkeit der Form $T_{\min} \propto f^{1/3}$ voraus. Durch einen an die Messdaten gelegten Fit ergibt sich eine Abhängigkeit von $T_{\min} \propto f^{36/100}$, welche somit um 9% von der Voraussage des Tunnelmodells abweicht, allerdings innerhalb der Streuung der Datenpunkte mit der Vorhersage übereinstimmt.

Aus den Werten der Temperatur sowie der Messfrequenz am Minimum kann zusätzlich die Konstante K aus (2.35) bestimmt und mit dem aus Tabelle 3.4 berechneten Wert verglichen werden. Bei der Messfrequenz $f = 20$ kHz liegt das Minimum bei einer Temperatur von $T_{\min} = 135,6$ mK. Hieraus folgt für den Wert der Konstanten $K = 2,9 \cdot 10^{-75} \text{ J}^3\text{s}$. Dieser Wert für K ist etwa 15% kleiner, als die in [Bec90, Woh01] berichteten. Diese Abweichung könnte durch einen kleinen Temperaturgradienten zwischen Probe und Experimentierplattform in der hier diskutierten Messung verursacht worden sein. Dieser

Gradient wird, wie in 4.3 diskutiert, mit zunehmender Temperatur der Experimentierplattform kleiner, weshalb der genaueste Wert der Konstanten K mit der Messung bei der größten Anregungsfrequenz gefunden wird. Vergleicht man die gemessenen Werte von K jedoch mit dem aus Tabelle 3.4 berechneten Wert $K = 1,5 \cdot 10^{-76} \text{ J}^3 \text{ s}$, so stellt man eine Abweichung von mehr als zwei Größenordnungen fest.

Die Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion bei verschiedenen Anregungsspannungen U_{exc} ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Eine hohe Anregungsspannung reduziert

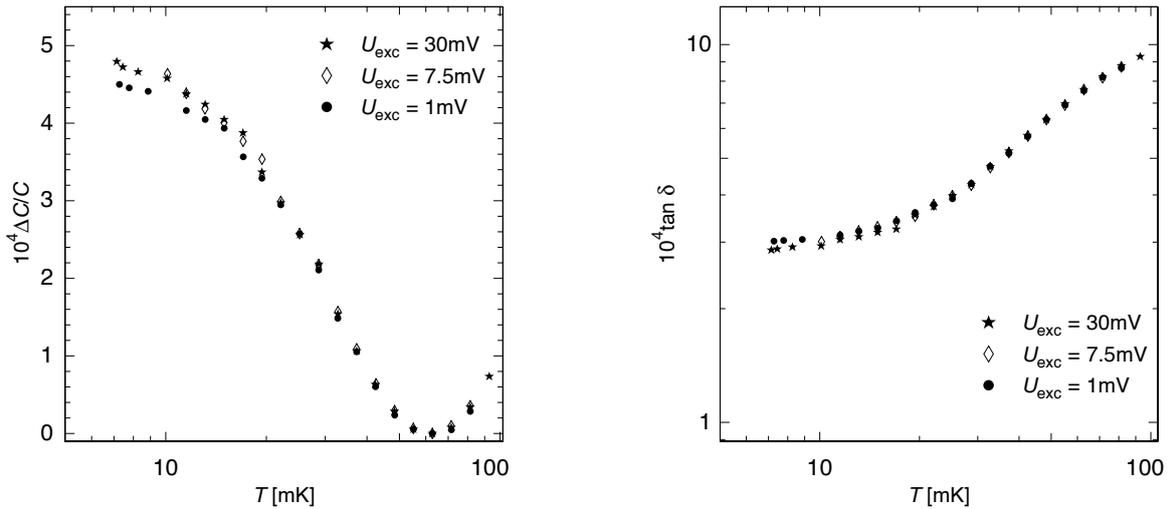


Abb. 4.5: Temperaturabhängigkeit von (**links**): der relativen Änderung der Kapazität sowie (**rechts**): des Verlustwinkels bei verschiedenen Anregungsspannungen. Die Messfrequenz beträgt $f = 1 \text{ kHz}$. Die elektrischen Feldstärken variieren im Bereich von 2 bis 60 V/m. In diesem Bereich der Feldstärken kann keine Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von der Feldstärke beobachtet werden.

einerseits die statistischen Messfehler, andererseits muss aber darauf geachtet werden, dass die elektrischen Felder in der Probe nicht zu groß werden. Dies würde sich in einer Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von der Feldstärke im Tieftemperaturbereich [Sto95] sowie einer größeren dissipierten Leistung in der Probe äußern. Um im linearen Bereich der Anregung zu liegen, muss das Kriterium $p_0 F \ll k_B T$ erfüllt sein. Unter der Annahme eines Dipolmomentes von 1 Debye bedeutet dies, dass bei $T = 5 \text{ mK}$ das anregende elektrische Feld $F \ll 20 \text{ kV/m}$ und somit die Anregungsspannung $U_{\text{exc}} \ll 10 \text{ V}$ (siehe Abschnitt 2.2.3) erfüllen muss. Die abgebildeten Messungen wurden bei Anregungsspannungen bis 75 mV aufgenommen. Es lässt sich weder beim Verlustwinkel noch bei der relativen Änderung der Kapazität eine systematische Abhängigkeit der Messgrößen von der Anregungsspannung feststellen. Dieses Ergebnis ist verträglich mit dem Kriterium (2.22). Das Abflachen der Messdaten ist analog zu Abbildung 4.3 deutlich zu erkennen. Auf die Ursache dessen wird im folgenden Abschnitt eingegangen.

4.1.2 Vergleich mit Messungen anderer Autoren

Abbildung 4.6 zeigt eine Messung der Temperaturabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung bei $f = 1$ kHz und $U_{\text{exc}} = 30$ mV sowie lineare Fits im Hoch- und Tieftemperaturbereich. Im Realteil der Permittivität sollen sich nach dem Tunnelmodell links- und

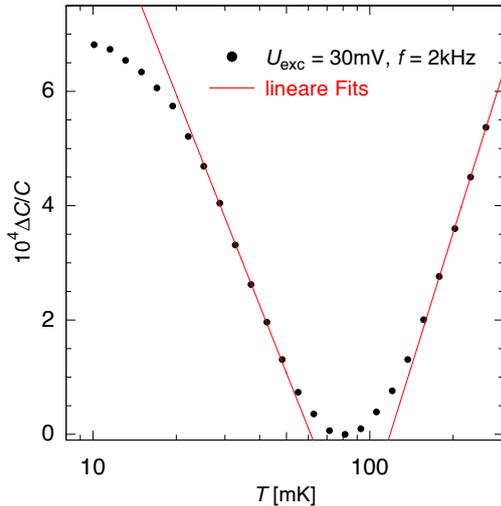


Abb. 4.6: Bestimmung des Steigungsverhältnisses der relativen Änderung der Kapazität. Die linearen Fits ergeben ein Verhältnis von $-0,8:1$ im Unterschied zur Voraussage des Tunnelmodells von $-2:1$.

rechtsseitig des Minimums Bereiche mit einer logarithmischen Temperaturabhängigkeit ergeben. Das Steigungsverhältnis soll nach dem Tunnelmodell (2.60) $-2:1$ betragen. Die Fits liefern ein Steigungsverhältnis von $-0,8:1$. Diese klare Abweichung zum Tunnelmodell

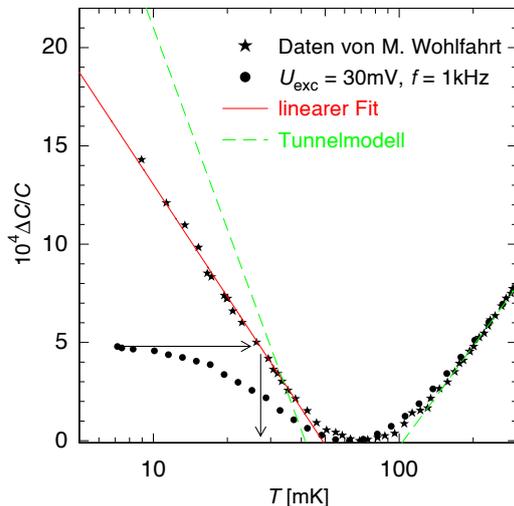


Abb. 4.7: Vergleich der gemessenen Daten der relativen Änderung der Kapazität mit den Daten von M. Wohlfahrt [Woh01] sowie dem Tunnelmodell. Bei beiden Messungen betrug die Frequenz $f = 1$ kHz und die Anregungsspannung $U_{\text{exc}} = 30$ mV. Auf der Tieftemperaturseite weichen die Daten stark voneinander ab, was mit einem Erwärmungseffekt der in dieser Arbeit gemessenen Probe erklärt werden kann.

wird von Messungen anderer Autoren bestätigt, jedoch wurde für den Wert des Steigungsverhältnisses ungefähr $-1:1$ [Bec90, Woh01] gefunden.

Um eine Erklärung für das abweichende Verhalten der Steigungsverhältnisse zu anderen Autoren zu finden, wurde in Abbildung 4.7 eine Messung der relativen Kapazitätsänderung aus dieser Arbeit gemeinsam mit Messdaten von M. Wohlfahrt dargestellt [Woh01].

Beide Messungen wurden an BK7 mit gleicher Anregungsfrequenz und -spannung durchgeführt. Betrachtet man die Messungen von hohen Temperaturen kommend, so stimmen diese bis zu Temperaturen von ungefähr 200 mK überein. Bei tieferen Temperaturen beginnen die Daten systematisch voneinander abzuweichen. Bis zum Minimum der Kapazitätsänderung liegen die Daten dieser Arbeit bei etwas höheren Werten, ab dem Minimum bei tieferen Werten. Dieser Sachverhalt lässt sich mit den gleichen Argumenten erklären wie die Abweichungen der Messungen aus Abbildung 4.4. Die in dieser Arbeit gemessenen Daten zeigen im Tieftemperaturbereich keinen ausgedehnten Temperaturbereich mit logarithmischem Verhalten, die relative Änderung der Kapazität bei $f = 1$ kHz ist in diesem Bereich um einen Faktor 3 kleiner als bei den Daten von M. Wohlfahrt. Dieses Verhalten lässt sich am plausibelsten durch eine ungenügende Thermalisierung der Probe erklären. Je tiefer die vorgegebene Temperatur ist, desto größer wird der thermische Widerstand des Probenhalters und der Temperaturgradient zwischen Probe und Experimentierplattform. So kommt es zu einem Abkoppeln der Proben temperatur, bei dem die eingebrachte Leistung in die Probe gerade von dem Wärmefluss aus der Probe ausgeglichen werden kann. Dieser Sachverhalt wird ausführlich in Abschnitt 4.3 diskutiert.

Geht man von einer vollständigen Thermalisierung der Glasprobe von M. Wohlfahrt aus, so kann man sich dessen Daten zur Bestimmung der Proben temperatur zu Nutze machen. Um die tiefste erreichte Temperatur der Probe zu bestimmen, wurde im resonanten Teil ein linearer Fit in die Daten gelegt. An diesen können, wie in Abbildung 4.7 durch Pfeile angedeutet, die Messdaten projiziert werden. Auf diese Weise lassen sich den Messdaten die Temperatur der Experimentierplattform zuordnen. Es ergibt sich eine Temperatur

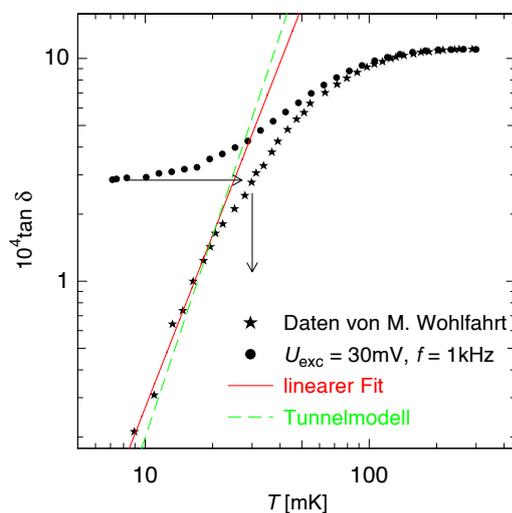


Abb. 4.8: Gemessener Verlustwinkel bei $f = 1$ kHz in Abhängigkeit von der Temperatur. Gezeigt sind die Daten einer Messung dieser Arbeit mit $U_{\text{exc}} = 30$ mV sowie Daten von M. Wohlfahrt. Zusätzlich ist das vom Tunnelmodell erwartete Verhalten und ein linearer Fit an die Daten eingezeichnet.

von $T = 27,2$ mK, was bei der tiefsten Temperatur des Kryostaten, $T = 7,1$ mK, einem Temperaturgradient von $\Delta T = 20,1$ mK entspricht.

Auch die Messung des Verlustwinkels zeigt starke Abweichungen von Daten anderer Autoren sowie dem Tunnelmodell. In Abbildung 4.8 wird eine Messung dieser Arbeit mit Daten von M. Wohlfahrt sowie mit der Voraussage des Tunnelmodells verglichen. Es wurde eine

Messung bei $f = 1 \text{ kHz}$ und $U_{\text{exc}} = 30 \text{ mV}$ ausgewählt, da die Messung von M. Wohlfahrt bei diesen Parametern durchgeführt wurde. Analog zur Diskussion von Abbildung 4.7 wurde anhand eines linearen Fits und der Messdaten von M. Wohlfahrt die minimale Proben­temperatur bestimmt. Wird der tiefste Wert des Verlustwinkels dieser Arbeit an die Daten von M. Wohlfahrt projiziert, erhält man eine minimale Proben­temperatur von $T = 29,7 \text{ mK}$. Dieses Ergebnis stimmt gut mit der Bestimmung der minimalen Temperatur aus den Daten der relativen Kapazitätsänderung überein.

Verwendet man die relative Kapazitätsänderung aus Abbildung 4.7 als Temperaturinformation, kann die Temperatur der gemessenen Daten des Verlustwinkels korrigiert werden. Wird mit dieser Korrektur die Temperaturabhängigkeit des Verlustwinkels von anderen

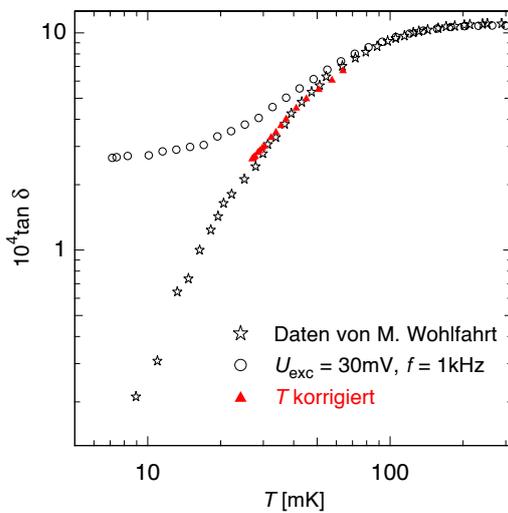


Abb. 4.9: Korrektur des relativen Verlustwinkels aus Messungen der relativen Kapazitätsänderung. Unter der Annahme, dass die Messung der relativen Kapazitätsänderung durch ein Abkoppeln der Temperatur abflacht, können Messdaten des Verlustwinkels anderer Autoren mit einer Messung dieser Arbeit reproduziert werden.

Autoren reproduziert, so wäre dies ein starker Hinweis dafür, dass das Abflachen der beiden unabhängigen Messgrößen die selbe Ursache besitzt.

Durch den Vergleich der Messwerte der relativen Kapazitätsänderung von den Daten dieser Arbeit mit den Daten von M. Wohlfahrt lässt sich eine Funktion finden, die den gemessenen Temperaturen der Experimentierplattform die tatsächliche Temperatur der Probe zuordnet. Diese Funktion wurde auf die Temperaturen der Messung des relativen Verlustwinkels angewendet, um den Messwerten des Verlustwinkels die tatsächliche Proben­temperatur zuzuordnen. Abbildung 4.9 zeigt die auf diese Weise korrigierten Daten. In guter Übereinstimmung können mithilfe dieser Korrektur die Messungen von M. Wohlfahrt reproduziert werden. Dies legt nahe, dass die Abweichungen der hier gemessenen Verlustwinkel bei tiefen Temperaturen hauptsächlich durch ein Abkoppeln der Proben­temperatur verursacht wird. Die kleine verbleibende Abweichung bei tiefen Temperaturen könnte von einer nicht perfekten Korrektur der parasitären Verluste, das heißt von der Wahl von $\tan \delta_0$, herrühren. Der Wert von $\tan \delta_0$ wurde hier so gewählt, dass die beiden Datensätze im Bereich des Plateaus möglichst gut übereinstimmen. Unter einer Änderung des gewählten Wertes von $\tan \delta_0$ um weniger als 10% können die korrigierten Messdaten sowie die Daten von M. Wohlfahrt in gute Übereinstimmung gebracht werden.

Der Temperaturgradient zwischen der Probe und der Experimentierplattform verhindert Messungen, die das abweichende Verhalten anderer Messungen vom Tunnelmodell (siehe Abschnitt 2.3) bestätigen. Bei BK7 wurden diese Abweichungen bei Temperaturen überhalb von $T = 8$ mK nicht gefunden. Das bedeutet, dass der verwendete Probenhalter mit dieser speziellen Probe nicht in der Lage ist, diese Abweichungen zu untersuchen, da die Temperatur der Probe nicht deutlich unter $T = 30$ mK abgesenkt werden konnte. Die Wärmeeinträge werden einerseits von den Messleitungen, welche den Kondensator elektrisch kontaktieren und andererseits durch dissipative Prozesse in der Probe verursacht. Die dissipativen Prozesse können anhand (3.8) beschrieben werden.

Abbildung 4.10 zeigt die Temperaturabhängigkeit der in der BK7-Probe dissipierten Leistung dieser Messungen bei einer Anregungsfrequenz von $f = 1$ kHz und verschiedenen Spannungen, berechnet aus korrigierten Daten des Verlustwinkels nach Abbildung 4.9 und der Kapazität des Kondensators von $C = 127,5$ pF. Typische Werte der Leistung lie-

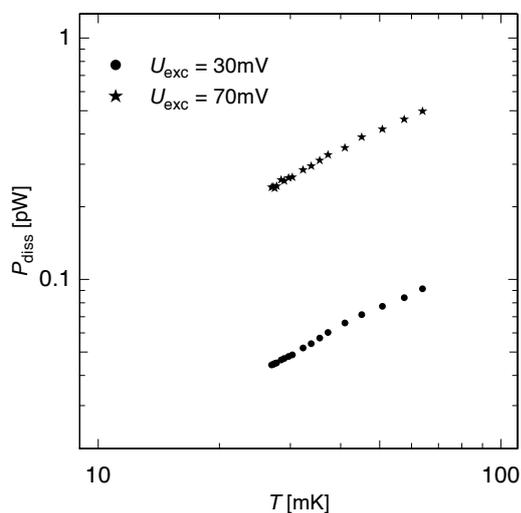


Abb. 4.10: In der BK7-Probe dissipierte Leistung nach (3.8) mit dem korrigierten Verlustwinkel $\tan \delta(T)$ aus Abbildung 4.9 doppellogarithmisch aufgetragen gegen die Probentemperatur. Die verwendete Messfrequenz betrug $f = 1$ kHz.

gen in der Größenordnung von 0,1 pF. In Abschnitt 4.3 wird auf die Auswirkungen bzw. die Abführung dieses Wärmeeintrages in die Probe näher eingegangen.

4.2 Messung an N-KZFS11

Neben der Messung am Probenmaterial BK7 wurde auch die Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion des Glases N-KZFS11 untersucht. Die Besonderheit dieses Glases ist das sehr hohe Kernquadrupolmoment der Tantalkerne (siehe Tabelle 3.4), welche zu einem großen Anteil in diesem Glas vorhanden sind. Werden Abweichungen vom Tunnelmodell durch die Quadrupolmomente der Kerne verursacht, so müssen sie bei diesem Glas bei deutlich höheren Temperaturen beobachtbar sein.

Es lagen bei diesen Messungen die gleichen experimentellen Probleme wie bei den Messungen am Probenmaterial BK7 vor. Bei der Messung des Verlustwinkels kommt erschwe-

rend hinzu, dass keine Daten vorliegen, auf welche die gemessenen Werte im Plateaubereich angepasst werden können. Für den Verlustwinkel werden daher die gleichen Korrekturen verwendet wie bei den Messungen an BK7 in Abschnitt 4.1. Diese Vorgehensweise ist plausibel, da die parasitären Verluste hauptsächlich durch die verwendeten Kabel und den Probenhalter verursacht werden sollten und beide in den hier diskutierten Messungen nicht variiert wurden.

In Abbildung 4.11 ist die Temperaturabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung sowie des Verlustwinkels im Bereich von Raumtemperatur bis zu einigen Millikelvin aufgetragen. Auch hier finden sich bei sehr tiefen Temperaturen qualitativ die Voraussagen des

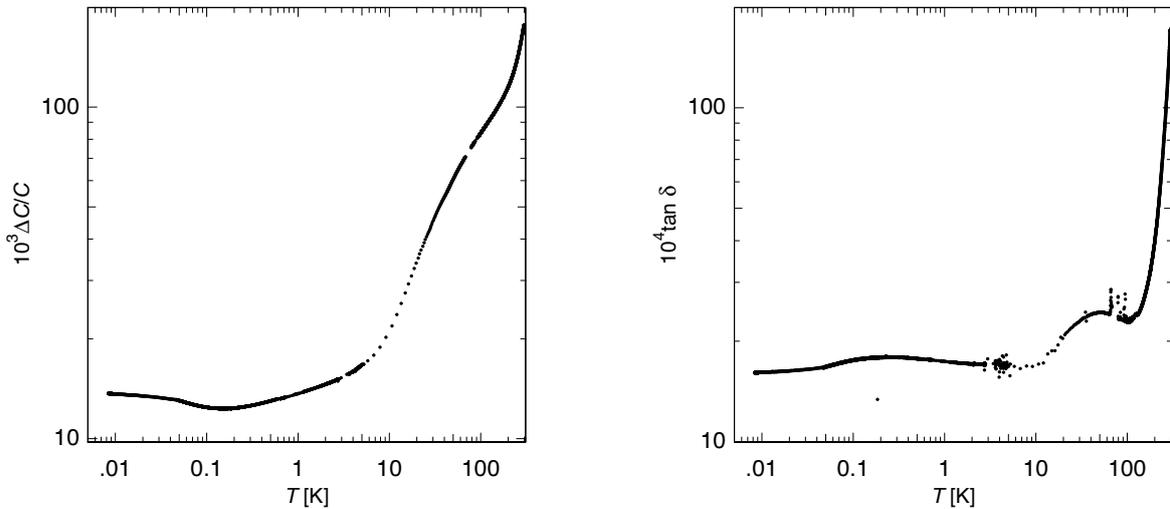


Abb. 4.11: (Links): Relative Änderung der Kapazität $\Delta C/C$ und (rechts): der Verlustwinkel $\tan \delta$ in Abhängigkeit der Temperatur. Die relative Kapazitätsänderung bezieht sich auf den Wert $C_0 = 167$ pF, der Verlustwinkel wurde in dieser Darstellung nicht korrigiert. Es wurde bei $f = 1$ kHz und $U_{\text{exc}} = 50$ mV im Temperaturbereich $5 \text{ mK} < T < 300 \text{ K}$ gemessen.

Tunnelmodells wieder (siehe Abschnitt 4.1.1).

Aufgrund des großen Quadrupolmomentes der Tantalkerne ist zu erwarten, dass Abweichungen im Tieftemperaturbereich von dem vorhergesagten logarithmischen Verhalten bei höheren Temperaturen zu finden sind. Um diese Voraussage zu überprüfen, ist in Abbildung 4.12 eine Messung der relativen Kapazitätsänderung und des Verlustwinkels im Tieftemperaturbereich gezeigt. Zusätzlich wurden im linken Teil der Abbildung Geraden eingezeichnet, welche das Steigungsverhältnis, angepasst auf den Relaxationsanteil, nach dem Tunnelmodell angibt. Im Gegensatz hierzu beträgt das gemessene Steigungsverhältnis -1,2:1 und weicht somit von der Voraussage des Tunnelmodells ab. Bei Temperaturen unterhalb von 40 Millikelvin beginnen die Messwerte vom linearen Verlauf abzuweichen. Wegen des Abkoppelns der Proben temperatur in den Messungen an BK7 in genau die-

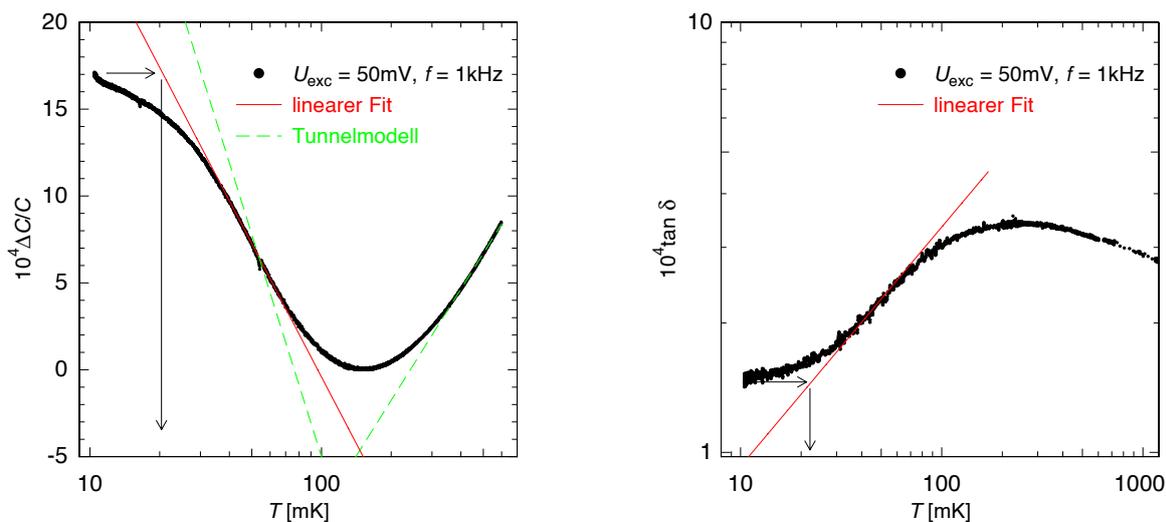


Abb. 4.12: (Links): Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung der Kapazität $\Delta C/C$ sowie die Voraussagen des Tunnelmodells für den Hoch- und Tieftemperaturbereich. Das experimentell ermittelte Steigungsverhältnis beträgt $-1,2:1$ im Gegensatz zur Voraussage des Tunnelmodells von $-2:1$. **(Rechts):** Temperaturabhängigkeit des Verlustwinkels $\tan \delta$. Im Hochtemperaturbereich fällt die Messgröße, im Widerspruch zum Tunnelmodell, stark ab.

sem Bereich kann das gezeigte Abflachen der Messdaten nicht unmittelbar durch Effekte der Kernmomente oder anderer intrinsischer Wechselwirkungen der Probe gedeutet werden. Zusätzlich wurde in das Diagramm ein linearer Fit im Tieftemperaturbereich eingezeichnet. Dieser Fit spiegelt das Verhalten der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion nach dem Tunnelmodell wider. Analog zum Vorgehen in Abschnitt 4.1.2 kann mithilfe dieser Geraden die minimale Proben­temperatur durch Projektion bestimmt werden. Dieses Vorgehen ist jedoch mit Fehlern behaftet, da davon ausgegangen werden muss, dass die Temperatur der Probe bereits von der Temperatur der Experimentierplattform abgekoppelt ist. Die Projektion ergibt für die minimale Proben­temperatur $T = 20,3$ mK. Auch die Messung des Verlustwinkels im rechten Teil der Abbildung weist starke Abweichungen vom Tunnelmodell auf. Im Temperaturbereich, in dem sich ein Plateau ergeben soll, zeigt sich eine vergleichsweise starke Abhängigkeit von der Temperatur. Im Tieftemperaturbereich ist erneut ein Abflachen der Messdaten zu erkennen, das vermutlich durch ein Abkoppeln der Proben­temperatur zu erklären ist. Auch hier wurde mittels eines linearen Fits nach den Voraussagen des Tunnelmodells die minimale Proben­temperatur bestimmt. In diesem Falle ergibt sich $T = 21,7$ mK.

Bei dem Probenmaterial BK7 sind im Temperaturbereich $T > 8$ mK bislang keine Abweichungen vom Tunnelmodell gefunden worden [Rog97, Woh01]. In Abbildung 4.13 ist

die Temperaturabhängigkeit der relativen Kapazitätsänderung der beiden verwendeten Proben aufgetragen. Die Temperatur, bei der die Minima der Temperaturabhängigkeit erscheinen, ist bei N-KZFS11 zu deutlich höheren Temperaturen verschoben. Der qualitative Verlauf der beiden Kurven ist ähnlich und die Messdaten beginnen bei ungefähr $T = 40$ mK abzuflachen. Dies legt nahe, dass das Abflachen der Messwerte beider Proben mit den gleichen Ursachen erklärt werden kann. Die Messdaten des Probematerials

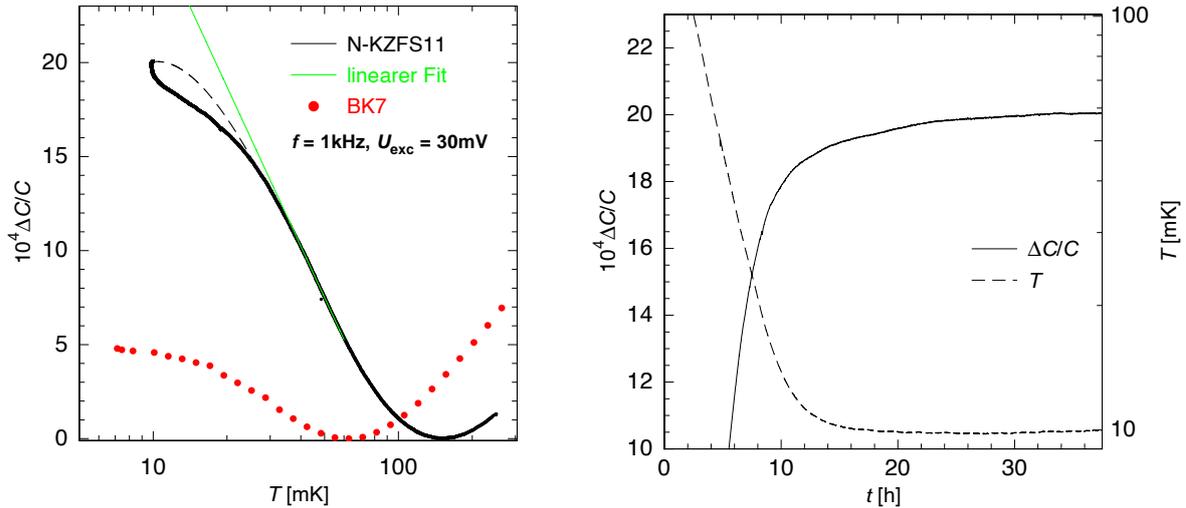


Abb. 4.13: (Links): Temperaturabhängigkeit der relativen Änderung der Kapazität von BK7 sowie N-KZFS11. Beide Messungen wurden mit der Anregungsfrequenz $f = 1$ kHz durchgeführt. Die Temperatur der Minimas des Probenmaterials N-KZFS11 ist zu deutlich höheren Temperaturen verschoben. Die Messwerte beider Proben flachen unterhalb von $T = 30$ mK deutlich ab. **(Rechts):** Relative Änderung der Kapazität und Temperatur der Experimentierplattform aufgetragen gegen die Zeit beim Abkühlen. Man erkennt eine monotone Änderung der Kapazitätsmesswerte während die Temperatur der Experimentierplattform bereits einen konstanten Wert erreicht hat.

N-KZFS11 zeigen bei den tiefsten Temperaturen eine weitere Anomalie. Hier kann der relativen Kapazitätsänderung kein eindeutiges Messergebnis zugeordnet werden. Die Messdaten wurden bei konstanter Temperatur der Experimentierplattform über mehrere Stunden aufgenommen. Der rechte Teil der Abbildung 4.13 zeigt den temperaturabhängigen Verlauf der relativen Kapazitätsänderung und die Temperatur der Experimentierplattform. Deutlich zu erkennen sind bei konstanter Temperatur der Experimentierplattform eine monoton steigende Änderung der Messergebnisse über mehr als 10 Stunden. Dieses Verhalten kann durch weiteres Abführen von Wärme aus der Probe bei einer konstanten Temperatur der Experimentierplattform erklärt werden. Wurde mit einer zu großen Kühlrate gekühlt, so wird einige Zeit benötigt, bis sich ein konstanter Temperaturgradient

zwischen Probe und Experimentierplattform einstellt. In dieser Zeit driften die Messwerte der Kapazität mit der Temperatur der Probe. Im linken Teil der Abbildung 4.13 wurde zusätzlich durch eine gestrichelte Linie angedeutet, wie eine Messung mit extrem kleiner Kühlrate aussehen könnte.

4.3 Thermalisierung der Glasprobe

Die schlechten thermischen Eigenschaften des Versuchsaufbaus ohne die vorgesehene ^3He -Füllung behindern Messungen im Temperaturbereich $T < 50 \text{ mK}$. Ob das Eintauchen des Probenmaterials in ein ^3He -Bad die aufgetretenen Probleme beseitigt, bleibt allerdings offen. In Abschnitt 4.1.2 wurde gezeigt, dass die Probe nicht unter $T = 30 \text{ mK}$ abgekühlt werden konnte. Dennoch können die Ergebnisse verwendet werden, um zukünftige Messungen zu verbessern. Hierzu wird anhand der Temperaturdifferenz zwischen Probe und Experimentierplattform sowie dem gesamten thermischen Widerstand des Versuchsaufbaus die bei der Messung in der Probe deponierte Leistung berechnet. Dieses Ergebnis motiviert unter Zuhilfenahme der dissipierten Leistung aus Abbildung 4.10 einen neuen Versuchsaufbau, welcher in der Lage ist, die Glasprobe bis zu deutlich tieferen Temperaturen zu thermalisieren.

Wärmeeinträge in die Probe geschehen einerseits durch die bei der Messung dissipierten Leistung sowie durch einen Wärmefluss in die Probe aufgrund der Messleitungen (siehe Abschnitt 3.6). Um Gründe für das Abkoppeln der Temperatur zu finden, wird deshalb im Folgenden der Wärmefluss aus der Probe in das Wärmebad des Kryostaten diskutiert.

Der Versuchsaufbau bestimmt grundlegend die unterschiedlichen Kanäle, über die die Probe thermalisieren kann. In jedem Probenhalter muss aber zunächst die Wärme in der Glasprobe zur Oberfläche und anschließend aus dem Glas in einen Film aus Metall diffundieren. Der Aufbau und die Eigenschaften der auf die Proben aufgetragenen metallischen Schichten wurde in Abschnitt 3.2.1 beschrieben.

Der thermische Widerstand innerhalb des Glases ist

$$R_{\text{th,Glas}} = \frac{l}{\lambda A} = 1.74 \cdot 10^4 \frac{\text{K}}{\text{W}}, \quad (4.1)$$

mit der Fläche der Glasprobe $A = 12 \times 12 \text{ mm}^2$. Für die mittlere Strecke zur Oberfläche des Glases wurde hier als Obergrenze die halbe Probendicke von $l = 0,25 \text{ mm}$ angenommen. Für die spezifische Wärmeleitfähigkeit des Glases wurde $\lambda = 10^{-4} \text{ W/Km}$ angenommen. Dies ist ein typischer Wert für Gläser bei einer Temperatur von 50 mK [Ste73]. Dieser Beitrag ist, wie gleich gezeigt wird, deutlich kleiner als andere thermische Widerstände des Probenhalters und wird im Folgenden vernachlässigt.

Betrachtet man den Wärmefluss aus dem Glas in den Metallfilm, ist der Wärmefluss durch zwei in Reihe geschaltete Prozesse gegeben [Kim04].

Der erste Widerstand ist der thermische Grenzflächenwiderstand, auch Kapitza-Widerstand genannt. Dieser begründet sich aus der Tatsache, dass an der Grenzfläche verschiedener

Medien unterschiedliche Schallgeschwindigkeiten aufeinandertreffen. Somit können Phononen an dieser Fläche gestreut werden und die Wärmeleitung wird behindert.

In [Swa89] werden Grenzflächenwiderstände verschiedener Materialkombinationen berechnet. Für den Übergang von Quarzglas zu Gold liefert der Artikel für die Wärmeleitfähigkeit die Beziehung

$$G_K = \frac{AT^3}{8} \frac{W}{\text{cm}^2\text{K}^4}. \quad (4.2)$$

Mit diesem Ergebnis wird der auftretende Kontaktwiderstand zwischen der Glasprobe und dem metallischen Film abgeschätzt.

Der zweite Prozess ist die Abgabe der Energie an die Elektronen des Metalls. Die Elektron-Phonon-Kopplung führt bei tiefen Temperaturen zum Wärmefluss [All87]

$$\dot{Q}_{ep} = k_{ep}V(T_e^5 - T_l^5), \quad (4.3)$$

mit den Temperaturen der Elektronen und des Gitters des Metalls T_e und T_l , dem Volumen V des Metallfilms und einem Proportionalitätsfaktor k_{ep} . Für kleine Temperaturunterschiede geht der Wärmefluss in $\dot{Q}_{ep} = k_{ep}T_e^4V\Delta T$ über und man erhält für die Wärmeleitung

$$G_{ep} = k_{ep}VT^4. \quad (4.4)$$

In der Arbeit von [Kim04] sind einige theoretische, sowie experimentelle Werte für k_{ep} für verschiedene Materialkombinationen gesammelt. Typische Werte der Konstanten k_{ep} für die hier auf der Probe aufgetragenen Metallschichten liegen im Bereich von $k_{ep} = 10^9 \text{ W/m}^3\text{K}^5$, wobei sich das Volumen des Metallfilms auf $V = 0,14 \text{ mm}^3$ beläuft. Um den thermischen Widerstand aufgrund der Elektron-Phonon-Kopplung abzuschätzen, wurde der experimentell bestimmte Wert für gesputtertes Gold $k_{ep} = 1,2 \cdot 10^9 \text{ W/m}^3\text{K}^5$ verwendet.

Die gesamte Leitfähigkeit G für den Wärmefluss aus dem Glas in den Metallfilm setzt sich schließlich zusammen aus

$$G = \left(\frac{1}{G_K} + \frac{1}{G_{ep}} \right)^{-1}. \quad (4.5)$$

Der Zusammenhang zum thermischen Widerstand ist durch $R_{th} = 1/G$ gegeben.

Folglich ist für den Wärmefluss bei tiefen Temperaturen die Elektronen-Phononen Kopplung G_{ep} aufgrund der stärkeren Abhängigkeit von der Temperatur der limitierende Faktor.

Nach diesem Modell kann die Wärmeleitung bei tiefen Temperaturen durch das Volumen des Metallfilmes V (4.4) beeinflusst werden. In Abbildung 4.14 ist die Temperatur aufgetragen, bei der bei gegebener Schichtdicke der Kapitza-Widerstand und der thermische Widerstand aufgrund der Elektron-Phonon Wechselwirkung gleich groß ist. Die Wärmeleitung wird im Bereich unterhalb der Kurve durch die Elektron-Phonon Kopplung und oberhalb durch den Kapitza-Widerstand dominiert.

Die Wärme des Metallfilms muss schließlich an den Kryostaten abgeführt werden. Der

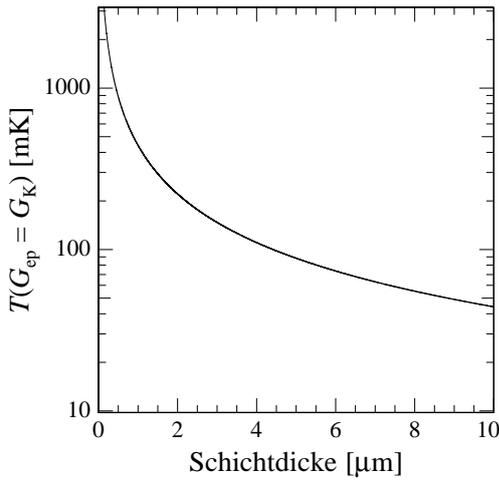


Abb. 4.14: Temperatur in Abhängigkeit der Schichtdicke, bei der der Kapitza-Widerstand (4.2) und der Wärmewiderstand aufgrund der Elektron-Phonon Kopplung (4.4) gleichgroß sind. Verwendet wurde $k_{\text{ep}} = 1,2 \cdot 10^9 \text{ W/m}^3\text{K}^5$.

wichtigste Kanal zur Thermalisierung führt über den elektrischen Kontakt des Goldfilmes, der Goldfolie und des Kupferstempels und schließlich durch den Topf aus Epoxidharz in den Kryostaten. Alle weiteren thermischen Widerstände zum Wärmebad des Kryostaten werden vernachlässigt.

Durch das Wiedemann-Franz Gesetz kann die elektronische Wärmeleitfähigkeit G_{el} bis zum isolierenden Topf abgeschätzt werden:

$$\frac{G_{\text{el}}}{\sigma_{\text{el}}} = \frac{R}{R_{\text{th}}} = LT, \quad (4.6)$$

mit der Lorenz-Zahl $L \cong 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$, dem thermischen Widerstand R_{th} und der elektrischen Leitfähigkeit σ_{el} . Anhand einer Vier-Draht Messung wurde der elektrische Widerstand R zwischen einem massiven Kupferkörper und einem auf Glas gesputterten Goldfilm, getrennt durch eine Goldfolie, gemessen. Diese Konfiguration soll die Situation im Probenhalter widerspiegeln.

Die Messung bei Raumtemperatur ergab $R = 50 \text{ m}\Omega$. Unter der Annahme eines konstanten elektrischen Widerstandes lässt sich hieraus der thermische Widerstand R_{th} dieses Kanals nach

$$R_{\text{th,el}} = 8 \cdot 10^5 \frac{1}{T} \frac{\text{K}^2}{\text{W}} \quad (4.7)$$

errechnen.

Bei dieser Abschätzung ist zu erwähnen, dass unter Abkühlung des Probenhalters der gemessene Wert des elektrischen Widerstandes verringert wird. Das Verhältnis der Widerstände eines Metalls bei Raumtemperatur und 4,2K wird durch das Restwiderstandsverhältnis $RRR = R/R_{4,2\text{K}}$ beschrieben. Unter der Vernachlässigung von magnetischen Verunreinigungen gilt stets $RRR \geq 1$, da bei tiefen Temperaturen der Widerstand aufgrund der fehlenden Streuung von Elektronen an Phononen verringert wird. Das Restwiderstandsverhältnis des gesputterten Goldfilms ist nicht bekannt, als Abschätzung kann jedoch der typische Wert von gesputtertem Gold mit $RRR = 2,5$ verwendet werden. Dieser Wert floss bereits in der Abschätzung (4.7) ein. Der thermische Widerstand aus (4.7)

wird jetzt mit dem des Epoxidharzes Stycast verglichen.

Für die Wärmeleitfähigkeit G_S des verwendeten Epoxidharzes findet sich im Bereich von 45 mK bis 455 mK die Beziehung [Arm78]

$$G_S = 4.9 \cdot 10^{-6} T^2 \frac{\text{W}}{\text{mK}^3}. \quad (4.8)$$

Umgerechnet auf den thermischen Widerstand ergibt sich für die Abmessungen des Topfes aus Epoxidharz und der Extrapolation von (4.8)

$$R_{\text{th},S} = \frac{l}{G_S A} = 2.3 \cdot 10^6 \frac{1}{T^2} \frac{\text{K}^3}{\text{W}}. \quad (4.9)$$

In Abbildung 4.15 werden die Beiträge zum gesamten thermischen Widerstand quantitativ verglichen. Im linken Teil der Abbildung wird der thermische Widerstand aufgrund

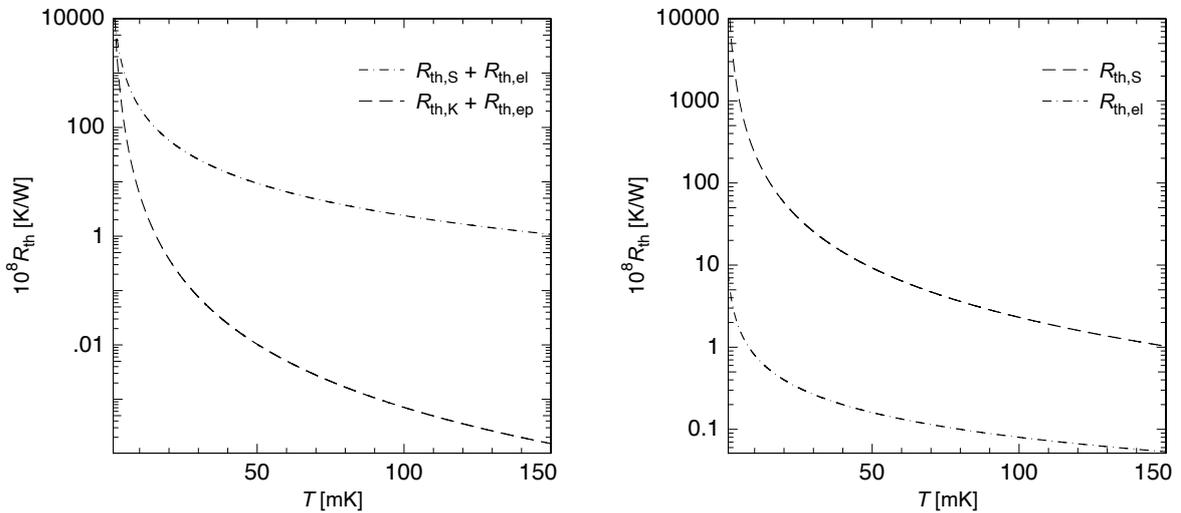


Abb. 4.15: Vergleich der Temperaturabhängigkeit der thermischen Widerstände von (**links**): des Probenhalters $R_{\text{th},S} + R_{\text{th},el}$ mit dem Weg vom Probenmaterial bis in das System der Leitungselektronen des Metallfilms $R_{\text{th},K} + R_{\text{th},ep}$ und (**rechts**): des Epoxidharztopfes $R_{\text{th},S}$ mit dem Weg von dem Metallfilm bis zum Epoxidharztopf $R_{\text{th},S}$. Den größten Beitrag zur Summe der thermischen Widerstände liefert $R_{\text{th},S}$, d.h. der Topf aus Stycast.

der Probenpräparation mit dem Widerstand des Probenhalters verglichen. Im Temperaturbereich, indem sich ein wesentlicher Temperaturgradient zwischen der Probe und der Experimentierplattform einstellt, dominiert der Beitrag des Probenhalters. Im rechten Teil der Abbildung wurde dieser in seine Summanden aufgelöst. Im dargestellten Temperaturbereich ist der thermische Widerstand aufgrund des Stycasttopfes dominant. Möchte man das Probenmaterial auf Temperaturen $T < 30$ mK kühlen, muss ein Probenhalter

entwickelt werden, welcher die Probe ohne einen phononischen Wärmewiderstand zum Wärmebad des Kryostaten thermalisieren kann. Durch diese Maßnahme kann die Glasprobe wesentlich besser der Temperatur der Experimentierplattform folgen.

Zusätzlich kann anhand der Gleichung

$$P = G\Delta T, \quad (4.10)$$

errechnet werden, bei welcher Leistung P und einer gegebenen Wärmeleitfähigkeit G sich eine Temperaturdifferenz ΔT zwischen Probe und der Experimentierplattform einstellt. Für die Wärmeleitfähigkeit gilt

$$G = \frac{1}{\sum R_{\text{th},i}} \quad (4.11)$$

mit sämtlichen thermischen Widerständen $R_{\text{th},i}$ des Probenhalters. Abbildung 4.16 zeigt

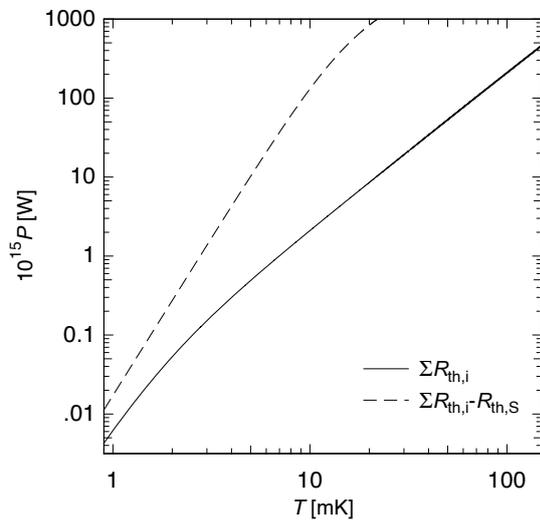


Abb. 4.16: Temperaturabhängigkeit der Leistung, die in die Probe eingebracht werden darf, sodass die Temperatur der Probe um nur $50 \mu\text{K}$ gegenüber der Temperatur der Experimentierplattform erhöht wird. Nach (4.10).

die Temperaturabhängigkeit der Leistung, bei welcher sich bei gegebenen thermischen Widerständen ein Temperaturgradient von ΔT zwischen der Probe und dem Wärmebad des Kryostaten einstellt. Zusätzlich ist durch die gestrichelte Linie die Leistung angegeben, die bei diesem Versuchsaufbau ohne den Topf aus Epoxidharz zum gleichen Temperaturgradienten führt. Diese Leistung ist um etwa 2 Größenordnungen höher als im Falle des Aufbaus mit Topf. Die Leistung, die bei einer Messung die Probe erreicht, kann mit den Ergebnissen dieses Abschnitts bestimmt werden. In Abschnitt 4.1.2 wurde gezeigt, dass die tiefste erreichte Probentemperatur etwa $T = 28 \text{ mK}$ beträgt. Bei einer Temperatur der Experimentierplattform $T = 7 \text{ mK}$ liegt ein Gradient von $\Delta T = 21 \text{ mK}$ vor. Aus (4.10) sowie dem gesamten thermischen Widerstand des Versuchsaufbaus lässt sich die eingebrachte Leistung berechnen. Wir erhalten hierfür

$$P_{\text{ges}} = 0.42 \text{ pW} \quad (4.12)$$

mit $\sum R_{\text{th},i} = 4.97 \cdot 10^{10} \text{ K/W}$. Diese Leistung setzt sich aus dissipativen Prozessen sowie dem Wärmefluss in den Messleitungen zusammen. Die Beiträge der dissipativen Prozesse

wurden berechnet und sind in Abbildung 4.10 dargestellt. Somit kann der Wärmeeintrag aufgrund der Messleitungen abgeschätzt werden, man erhält

$$P_{\text{Kabel}} = P_{\text{ges}} - P_{\text{diss}} \approx 0.32 \text{ pW}. \quad (4.13)$$

Um das Abkoppeln der Temperatur zu verhindern, muss somit die Summe der thermischen Widerstände verkleinert und die thermische Ankopplung der Messleitungen verbessert werden. Der Probenhalter liefert den dominanten Beitrag des thermischen Widerstandes, der eine ausreichende Thermalisierung der Probe verhindert. Aus diesem Grund wird im folgenden Abschnitt ein Aufbau vorgestellt, der bezüglich seiner thermischen Eigenschaften verbessert ist.

4.4 Messung der dielektrischen Funktion mittels einer mikrostrukturierten Glasprobe

In Kapitel 4.3 wurde die thermische Ankopplung der Probe an das Wärmebad des Kryostaten diskutiert. Es wurde gezeigt, dass die hauptsächliche Ursache der geringen Wärmeleitung zwischen Probe und Kryostat vom Probenhalter verursacht wurde. Zusätzlich muss die thermische Isolation der Probe von den Messleitungen verbessert werden. Aufgrund dessen wurde im Rahmen dieser Diplomarbeit ein neuer Versuchsaufbau entworfen, welcher beide Bedingungen erfüllt und somit in der Lage ist, die Probe zu tieferen Temperaturen abzukühlen.

Die wichtigste Änderung ist die Verwendung einer mikrostrukturierten Glasprobe, welche es ermöglicht, eine komplette Oberfläche der Probe auf kürzestem Weg an das Wärmebad des Kryostaten elektronisch anzukoppeln. Dies sollte das Abführen der Wärme aus der Probe um ein Vielfaches erleichtern.

Aufbau der Kapazität

Im Gegensatz zum Plattenkondensator aus Kapitel 3.2.1, wurde bei diesem Aufbau eine Kapazität in Anlehnung an einen Interdigitalwandler¹ auf nur einer Seite einer Glasplatte erzeugt. Abbildung 4.17 zeigt ein schematisches Bild eines Interdigitalwandlers. Er besteht aus zwei ineinandergreifenden kammförmigen, leitenden Strukturen, deren Kapazität im wesentlichen von der Länge sowie dem Abstand der Finger abhängig ist.

Die Metallfilme auf der Glasprobe wurden durch einen Ätzprozess mit Techniken der

¹Interdigitalwandler kommen bei der Erzeugung von Oberflächenwellen zum Einsatz. Sie bestehen aus ineinandergreifenden fingerartigen, elektrisch leitenden Strukturen, welche auf einem piezoelektrischem Material aufgebracht werden. Durch Anlegen einer Wechselspannung kommt es zu periodischen Längenänderungen des Trägermaterials und Oberflächenwellen werden erzeugt. Dieser Effekt funktioniert auch in der Gegenrichtung und findet Verwendung in der Hochfrequenztechnik.

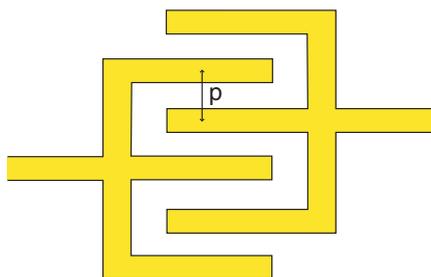


Abb. 4.17: Schematisches Bild einer Fingerstruktur. Die prozessierte Struktur besitzt einen Mitte-zu-Mitte-Abstand von $p = 50 \mu\text{m}$

Mikrostrukturierung hergestellt. Dies beinhaltet Sputtern, optische Lithografie und chemisches Ätzen. In Abbildung 4.18 sind die wichtigsten Prozesse zur Herstellung der Probe

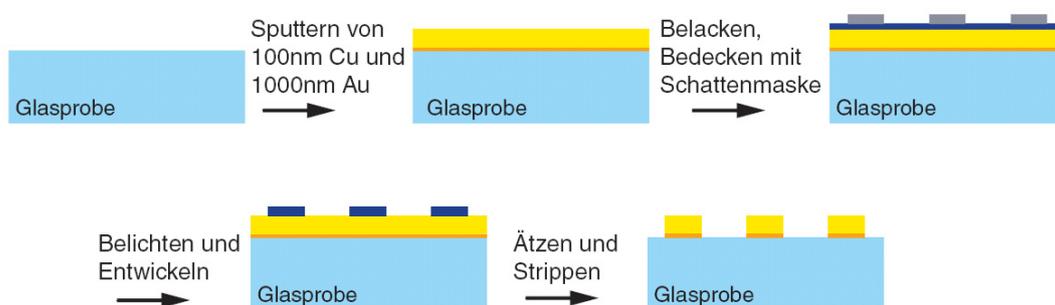


Abb. 4.18: Schematische Darstellung der wichtigsten Schritte zur Mikroprozessierung der Probe. Die Beschreibung des Verfahrens findet sich im Text.

illustriert. Zu Beginn wurde auf die Glasprobe eine 200 nm hohe Schicht aus Kupfer und anschließend eine $1 \mu\text{m}$ hohe Schicht aus Gold gesputtert². Näheres zum Sputterprozess findet sich zum Beispiel in [Tow76].

Im nächsten Schritt wurde ein Positivlack³ mittels spin-coating auf die Goldschicht aufgetragen. Mit einem CAD-Programm⁴ wurde das Design des Kamms angefertigt und durch eine Maskenschreiber eine Schattenmaske erzeugt. Der Photolack auf dem Metallfilm wurde mit der Maske bedeckt und mit UV-Licht bestrahlt, was das Lösen des Lackes an den bestrahlten Stellen durch eine geeignete Entwicklerlösung ermöglicht.

Im nächsten Schritt wurde mit Königswasser der freigelegte Anteil der Goldschicht durch Ätzen entfernt. Schließlich wurden die Lackreste auf der Kammstruktur entfernt.

²Für die Kathodenzerstäubung wurde ein Argonplasma, gezündet mit einer Gleichspannung verwendet.

³AZ5214E, im Vertrieb von MichroChemicals GmbH, Schillerstraße 18, 89077 Ulm

⁴AutoCAD 2003, <http://www.autodesk.de/adsk/servlet/index?siteID=403786&id=10481054>

4.4.1 Design des Kammes

Da die Kammstruktur die Kapazität erzeugt, mit der die dielektrische Funktion des Probenmaterials gemessen werden soll, sind an ihr Design einige Anforderungen gestellt.

Zunächst begünstigt eine möglichst große Kapazität die Messung bezüglich ihres Signal-Rausch-Verhältnisses. Die Probengeometrie beträgt wie in Kapitel 3.2.1 $V = 12 \times 12 \times 0.5 \text{ mm}^3$. Der wichtigste Parameter, um die Kapazität zu maximieren, ist die Anzahl der Fingerpaare auf der Probe. Da die Oberfläche des Glases begrenzt ist, ist die Anzahl der Paare bestimmt durch die Breite und den Abstand der Finger. Der Abstand der Finger kann nicht beliebig klein gewählt werden, da versucht wurde, nicht-lineare Effekte (siehe Kapitel 2.2.3) zu vermeiden. Mit der finiten Elemente-Simulation FEMM⁵ wurde eine Rechnung erstellt, welche für verschiedene Längen und Breiten der Finger die Kapazität sowie die auftretenden elektrischen Felder zwischen einem Fingerpaar berechnet.

In Abbildung 4.19 ist die Feldstärkenverteilung bei einer angelegten Spannung von $U_{\text{exc}} = 10 \text{ mV}$ der letztlich produzierten Probe dargestellt. Gezeigt ist der Querschnitt eines Fingerpaares inklusive Glassubstrat und Vakuum. Die Breite sowie der Abstand der Finger beträgt $25 \mu\text{m}$. Um die Bedingung für den Fall der linearen Anregung aus (2.22) zu er-

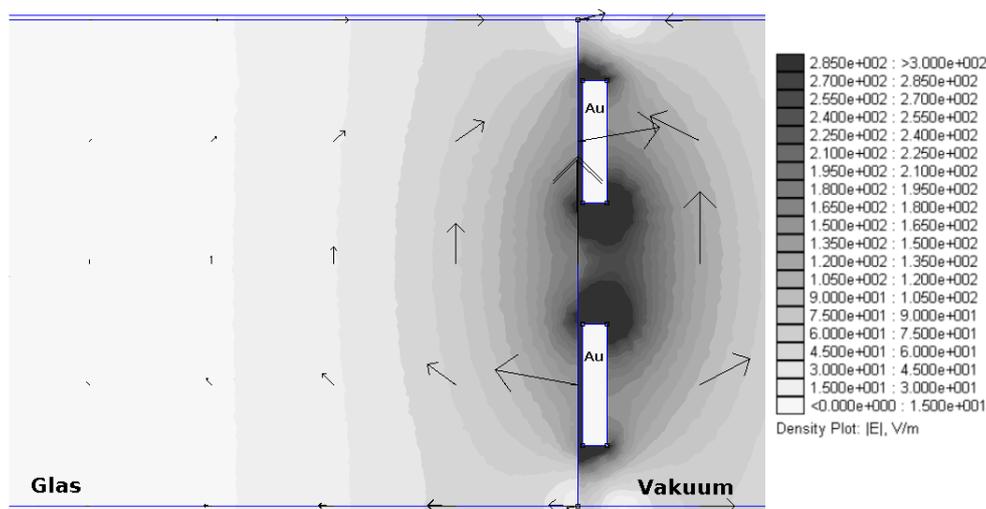


Abb. 4.19: Elektrisches Feld eines Fingerpaares mit $\epsilon_r = 8$. Zu erkennen sind in der Mitte des Bildes die Finger, welche sich auf unterschiedlichem Potential befinden. Auf der linken Seite der Finger befindet sich die Probe, welche vom elektrischen Feld durchsetzt wird.

füllen, muss bei Temperaturen oberhalb von 5 mK für das angelegte elektrische Feld $F \ll 20 \text{ kV/m}$ gelten. Der Großteil des Feldes innerhalb der Probe ist um mindestens einen Faktor 100 kleiner als das Feld aus (2.22), weshalb nicht-lineare Effekte nur direkt

⁵Finite Element Method Magnetics, <http://femm.foster-miller.net/>

an der Grenzfläche von Bedeutung sein könnten.

Die Simulation liefert für die Kapazität eines solchen 1 mm langen Fingerpaares den Wert

$$C_{\text{Paar}} = 4,5 \cdot 10^{-2} \text{ pF}, \quad (4.14)$$

was die Grundlage zur Berechnung der Gesamtkapazität der vollständig strukturierten Probe darstellt.

Da zur Prozessierung und Arretierung ein Teil der Oberfläche benötigt wird, kann nicht die gesamte Fläche der Probe mit Fingerpaaren bedeckt werden. Werden Randeffekte an den Fingerenden vernachlässigt, kann mit (4.14), der Anzahl der Fingerpaare und der Länge der Finger die Gesamtkapazität der mikrostrukturierten Probe abgeschätzt werden. Mit etwa 60 Fingerpaaren der Länge 4 mm und 140 Fingerpaaren der Länge 10 mm ergibt die Rechnung $C_{\text{ges}} \approx 75 \text{ pF}$.

4.4.2 Aufbau des Probenhalters

Die Messung der im obigen Abschnitt beschriebenen Kapazität erforderte die Konstruktion eines neuen Probenhalters. Eine weitere Motivation zur Entwicklung eines neuen Aufbaus ist das schlechte Verhalten des Probenhalters in Kapitel 3.2 in magnetischen Feldern, wegen dessen starker Anfälligkeit auf Heizen durch Wirbelströme.

Durch das Ändern des magnetischen Feldes des Magneten kommt es aufgrund von Induktion zu Wirbelströmen, welche den Probenhalter und somit die Probe heizen.

Aus diesem Grund besitzt der hier beschriebene Versuchsaufbau einen Querschnitt in Form eines T-Trägers, welcher Induktionsströme stark unterdrückt (siehe Abschnitt 3.6). Für eine erhöhte Korrosionsbeständigkeit und einen besseren elektrischen und thermischen Kontakt zwischen Probe und Probenhalter, wurde auf dem Probenhalter eine 1,5 μm dicke Goldschicht galvanisch abgeschieden⁶.

In Abbildung 4.20 ist der Probenhalter in einer Explosionsansicht mit allen wichtigen Komponenten gezeigt. Die Glasprobe wird in eine Aussparung am Probenhalter eingelegt und mit zwei CuBe-Fingerfedern angepresst. Der elektrische Kontakt geht von den SMA-Buchsen über supraleitende NiTi Drähte auf eine Kaptonfolie mit aufgedampften Kupferbahnen. Von dort werden mit Aluminium-Bonddrähten die Bondpads der Probe kontaktiert.

4.4.3 Thermalisierung der Glasprobe

Die Möglichkeit, eine vollständige Fläche der Glasprobe thermisch direkt mit dem Probenhalter zu verbinden, stellt hinsichtlich der thermischen Eigenschaften eine deutliche Verbesserung im Vergleich zum Aufbau aus Kapitel 3.2.1 dar.

Die Thermalisierung der Glasprobe des in diesem Abschnitt beschriebenen Aufbaus wird

⁶Durchgeführt von Frank Budei GmbH, Robert-Bosch-Str. 19, 75180 Pforzheim.

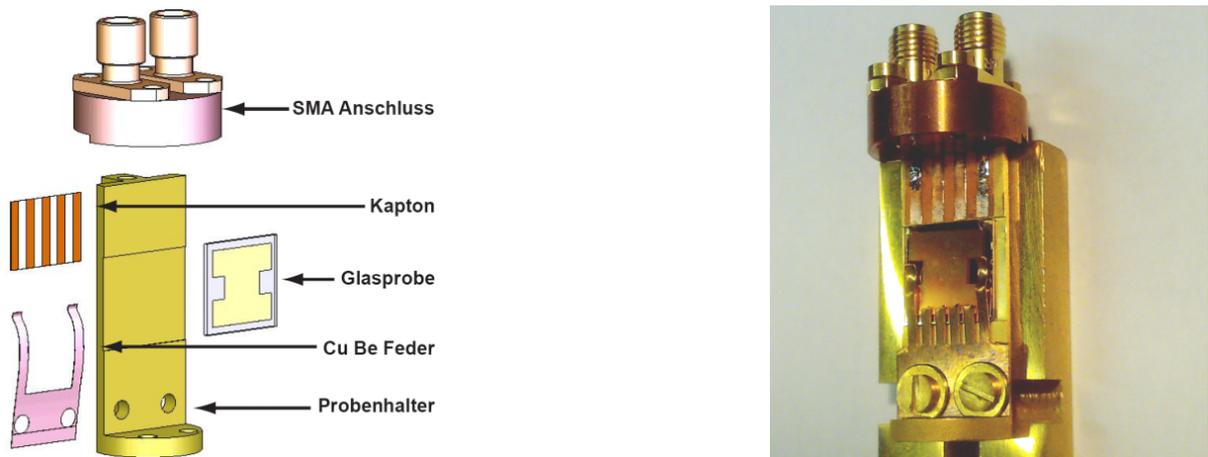


Abb. 4.20: Probenhalter zur Messung der mikrostrukturierten Glasprobe. (**links**): Explosionsansicht mit den wichtigsten Bauteilen. (**rechts**): Foto des vollständig montierten Probenhalters.

durch die elektronische Verbindung einer Glasfläche mit dem Kryostaten wesentlich verbessert. Zusätzlich wurden weitere thermische Widerstände sowie eine thermische Ankopplung für die Messleitungen eingebaut, um den Wärmefluss aufgrund der Messleitungen möglichst gut abzufangen. Den größten Wärmewiderstand auf dem Weg der Messleitungen zur Probe liefern die Bonddrähte, weil sie einerseits mit $d = 25 \mu\text{m}$ einen äußerst kleinen Querschnitt besitzen und andererseits bei tiefen Temperaturen in die supraleitende Phase wechseln. Zusätzlich verfügt dieser Aufbau in Form der aufgeklebten Kaptonfolie über einen weiteren Kanal die Wärme der Messleitungen abzugeben.

Um den thermischen Kontakt zwischen der Rückseite der Probe und dem Probenhalter zu optimieren, wurde in Analogie zur Probenpräparation des Aufbaus aus Kapitel 3.2.1 die Rückseite mit einem Metallfilm beschichtet. Aufgrund der Abschätzungen in Kapitel 4.3 wurde jedoch das Volumen des Metallfilms verdoppelt. Nach einer $1,9 \mu\text{m}$ dicken Schicht aus Kupfer wurde eine 100 nm dicke Schicht aus Gold auf das Glassubstrat aufgebracht. Der thermische Widerstand dieses Aufbaus wird durch den Kapitza-Widerstand, der Kopplung von Elektronen mit Phononen im Metallfilm sowie dem elektrischen Kontakt zwischen dem Probenhalter und dem Metallfilm dominiert.

Die Wärmeleitung von der Probe in den Metallfilm ist in Kapitel 4.3 beschrieben und kann unter Berücksichtigung des verdoppelten Volumens des Metallfilmes übernommen werden.

Der thermische Kontakt zwischen dem Metallfilm und dem Wärmebad des Kryostaten ist von metallischem Charakter. Dies bedeutet insbesondere, dass der große thermische Widerstand des Epoxidharztopfes $R_{\text{th,S}}$ aus Abschnitt 4.3 nicht vorhanden ist. Hieraus resultiert eine deutlich bessere Wärmeleitung, die durch den elektrischen Widerstand an der Grenzfläche zwischen Metallfilm und Probenhalter bestimmt und durch den damit

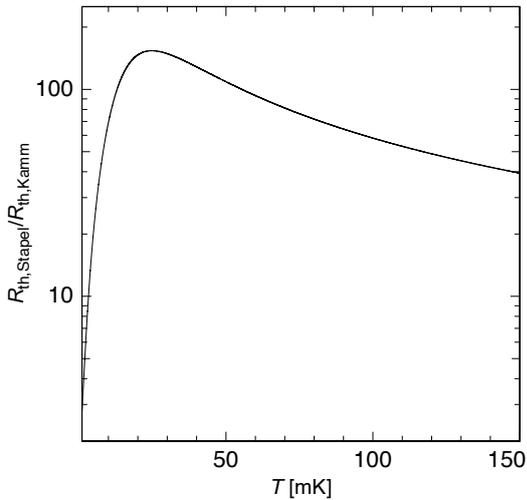


Abb. 4.21: Temperaturabhängigkeit des Verhältnisses $R_{th,Stapel}/R_{th,Kamm}$. Besonders im Tieftemperaturbereich ist die Wärmeleitung des neu entwickelten Aufbaus deutlich größer.

verbundenen thermischen Widerstand dominiert wird. Analog zum Vorgehen aus Abschnitt 4.3 kann der elektrische Widerstand zwischen den Schichten bestimmt und über das Wiedemann-Franz Gesetz (4.6) in einen thermischen Widerstand umgerechnet werden. Als Abschätzung dieses Widerstandes dient in dieser Arbeit der Wert $R = 50 \text{ m}\Omega$ aus Kapitel 4.3. In Abbildung 4.21 werden die thermischen Widerstände der beiden in dieser Arbeit verwendeten Probenhalter verglichen. Der Widerstand des Probenhalters des Stapelaufbaus wird mit $R_{th,Stapel}$, der Widerstand des Probenhalters der Kammstruktur mit $R_{th,Kamm}$ bezeichnet. Im Temperaturbereich, in dem die Temperatur der Probe in den Messungen aus Kapitel 4.1 derjenigen des Kryostaten nicht mehr folgen konnte, unterscheiden sich die thermischen Widerstände um etwa zwei Größenordnungen.

Mit der Erzeugung der Kapazität auf nur einer Seite der Glasprobe sind auch Nachteile verbunden. Im Vergleich zum Probenhalter aus Abschnitt 3.2 kann nur eine kleinere Kapazität erzeugt werden. Dies wird sich in einer Verschlechterung des Signal-Rausch-Verhältnisses äußern. Weiterhin werden an der Oberfläche des Glases, auf die die Struktur aufgebracht wurde, hohe elektrische Feldstärken erwartet (siehe Abbildung 4.19). Da keine Messung bei sehr tiefen Temperaturen vorliegt, ist unklar, ob das Kriterium (2.22) bei Messungen der Kapazität erfüllt ist. Außerdem liegt eine inhomogene Feldverteilung vor, was bedeutet, dass man in den Messergebnissen Mischfälle von linearer und nicht-linearer Anregung bei hohen Feldern erwarten muss. Da nur ungefähr die Hälfte des erzeugten Feldes der Struktur in die Glasprobe reicht, ist zu erwarten, dass die relativen Änderungen der Kapazität sowie die Änderung des Verlustwinkels im Vergleich zum Versuchsaufbau aus Kapitel 3.2 bei gleicher Kapazität reduziert werden.

Der in diesem Abschnitt vorgestellte Versuchsaufbau scheint in der Lage zu sein, die dielektrische Funktion von Gläsern bei deutlich tieferen Temperaturen zu messen. Ohne die Verwendung des Stycastopfes, durch den Wärme beim Abkühlen diffundieren muss, kann im Tieftemperaturbereich eine um ungefähr zwei Größenordnungen höhere Leistung in die Probe eingebracht werden, sodass sich der selbe Temperaturgradient zwischen

der Probe und der Experimentierplattform einstellt (siehe 4.16). Messungen mit diesem Versuchsaufbau wurden bereits bei $T \geq 100$ K durchgeführt. Der Einsatz bei sehr tiefen Temperaturen steht jedoch noch aus. Es besteht weiterhin großes Interesse, Abweichungen vom Tunnelmodell bei sehr tiefen Temperaturen zu untersuchen. Im Besonderen wird die Probe N-KZFS11 einen starken Hinweis auf eventuelle Einflüsse der Quadrupolmomente der Kerne auf die dielektrische Funktion liefern, weshalb an dieser Probe systematische Untersuchungen fortgesetzt werden müssen.

5. Zusammenfassung und Ausblick

Anlass zur Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften amorpher Festkörper geben Messungen an BAS-Glas¹ von Strehlow *et al.* bei ultratiefen Temperaturen. Es ergab sich eine unerwartete Abhängigkeit von schwachen magnetischen Feldern.

Die Tieftemperatureigenschaften von amorphen Festkörpern können in guter Übereinstimmung mit experimentellen Resultaten mithilfe des Tunnelmodells beschrieben werden. Abhängigkeiten von magnetischen Feldern lassen sich innerhalb dieses Modells jedoch nicht erklären. Einen starken Hinweis zum Verständnis der gefundenen Abhängigkeiten geben Polarisationsechoexperimente. Um diese Effekte zu erklären, wurde der Einfluss von Kernmomenten in das Tunnelmodell integriert. Mit dieser Erweiterung lassen sich Voraussagen treffen, welche mit der Meßgröße sehr gut übereinstimmen. Auch die Abhängigkeit von magnetischen Feldern kann innerhalb dieser Erweiterung in guter Übereinstimmung mit experimentellen Resultaten erklärt werden.

Experimentell gefundene Abweichungen vom Tunnelmodell sowie Abhängigkeiten von magnetischen Feldern der dielektrischen Funktion sind noch immer nicht vollständig verstanden. Einflüsse von Kernmomenten auf dielektrische Eigenschaften amorpher Systeme können, wie bei den Polarisationsechoexperimenten, den Schlüssel zum Verständnis der Abweichungen von den Voraussagen des Tunnelmodells darstellen.

In der vorliegenden Arbeit wurden die dielektrischen Eigenschaften der Mehrkomponentengläser BK7 und N-KZFS11 untersucht. Diese Proben unterscheiden sich stark in den Quadrupolmomenten ihrer Atomkerne, welche die Gläser bilden. Sind die Einflüsse der Quadrupolmomente auch bei anderen Messgrößen von wichtiger Bedeutung, ergeben sich Abweichungen vom Tunnelmodell bei unterschiedlichen Temperaturen, was sich in einem qualitativ anderen Verhalten der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion der beiden Proben äußert. Die Abweichungen sind im Temperaturbereich $T < 30$ mK zu erwarten.

Die Messwerte wurden in einem ³He/⁴He-Verdünnungskryostaten bei Temperaturen $T > 6$ mK aufgenommen. Die Voraussagen des Tunnelmodells wurden in vielen Punkten durch Messungen der relativen Kapazitätsänderung sowie des Verlustwinkels der Proben qualitativ bestätigt. In Übereinstimmung mit Messungen anderer Autoren besitzt die Kapazität der Proben bei rund $T = 100$ mK ein Minimum. Links- und rechtsseitig des Minimums ergeben sich in Abhängigkeit der Temperatur logarithmische Anstiege. Die Messung des Verlustwinkels zeigt, von tiefen Temperaturen kommend, einen Anstieg, der bei der Probe BK7 bei ungefähr 300 mK in ein nahezu frequenz- und temperaturunabhängiges Plateau mündet. Die Messung des Verlustwinkels der Probe N-KZFS11 zeigt im Plateaubereich eine deutliche Abhängigkeit von der Temperatur.

¹a-BaO-Al₂O₃-SiO₂

Aufgrund der schwachen thermischen Ankopplung der Proben sowie durch Wärmeeinträge durch die Messleitungen wurden Untersuchungen im Tieftemperaturbereich erschwert, in welchem Abweichungen vom Tunnelmodell von anderen Autoren gefunden wurden. In diesem Temperaturbereich konnte kein qualitativ unterschiedlicher Verlauf der Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Funktion der beiden Proben gefunden werden.

Die zu untersuchende Kapazität wurde durch eine besondere elektrische Kontaktierung mehrerer Glasproben realisiert. Diese Kontaktierung schließt eine starke thermische Ankopplung des Probenmaterials an das Wärmebad des Kryostaten aus. Bei der gegebenen Wärmeleitung konnten Wärmeeinträge nicht ausreichend abgeführt werden, weshalb die Glasproben nicht unter $T = 30$ mK abgekühlt werden konnten. Dieser Sachverhalt wurde anhand mehrerer Messungen nachgewiesen. Aus dem Temperaturgradienten zwischen der Probe und der Experimentierplattform konnten die Größen der Wärmeeinträge in die Probe ermittelt werden. Diese Ergebnisse wurden zur Entwicklung eines neuen Versuchsaufbaus verwendet.

Der neue Versuchsaufbau besitzt eine wesentlich bessere Wärmeleitung zum Wärmebad des Kryostaten und verfügt über weitere Möglichkeiten, die Wärmeeinträge der Messleitungen abzufangen. Die Kapazität wurde mit Techniken der Mikrostrukturierung durch einen Ätzprozess erzeugt. Der Probenhalter wurde in der institutseigenen Werkstatt hergestellt und der gesamte Versuchsaufbau in einem Stickstoffbad erfolgreich getestet. Der neue Versuchsaufbau ist in der Lage, die dielektrischen Eigenschaften amorpher Systeme bis zu deutlich tieferen Temperaturen zu untersuchen. Messungen mit diesem Aufbau bei sehr tiefen Temperaturen stehen noch aus.

Die Untersuchung der dielektrischen Funktion in Abhängigkeit von magnetischen Feldern können neue Erkenntnisse der Dynamik sowie der Wechselwirkungsmechanismen der Tunnelsysteme liefern. Aus diesem Grund ist es wichtig, systematische Messungen an dielektrischen Gläsern fortzusetzen.

Literaturverzeichnis

- [AG08] Schott AG, Optisches glass, datenblätter, Hattenbergstr. 10, 55122 Mainz, 2008.
- [All87] Philip B. Allen, Theory of thermal relaxation of electrons in metals, *Phys. Rev. Lett.*, **59**(13), 1460–1463, 1987.
- [And72] P.W. Anderson, B.I. Halperin, und C.M. Varma, Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses, *Phil. Mag.*, **25**, 1, 1972.
- [And04] Andeen-Hagerling, Cleveland, Ohio, USA, *AH 2700A 50 Hz - 20 kHz Ultra-Precision Capacitance Bridge - Operation and Maintenance Manual*, 2004.
- [Arm78] G. Armstrong, A. S. Greenberg, und J. R. Sites, Very low temperature thermal conductivity and optical properties of stycast 1266 epoxy, *Review of Scientific Instruments*, **49**, 345–347, 1978.
- [Baz08] Masoomeh Bazrafshan, *Investigation of the microscopic nature of tunnelling systems in amorphous glycerol by two-pulse polarisation echo experiments*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2008.
- [Bec90] Clemens Bechinger, Dielektrische messungen an silikatgläsern bei temperaturen unter 1k, 1990.
- [Buc84] U. Buchenau, N. Nücker, und A. J. Dianoux, Neutron scattering study of the low-frequency vibrations in vitreous silica, *Phys. Rev. Lett.*, **53**(24), 2316–2319, 1984.
- [Bur06] A. L. Burin, I. Ya. Polishchuk, P. Fulde, und Y. Sereda, Low-temperature breakdown of coherent tunneling in amorphous solids induced by the nuclear quadrupole interaction, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, **73**(1), 014205, 2006.
- [CE89] M.v. Schickfus C. Enss, C. Bechinger, Dynamics of tunneling states in borosilicate glass, *Phonons 89, World Scientific, Singapore*, 1989.
- [CT07] Claude Cohen-Tannoudji, *Quantenmechanik*, Gruyter, 2007.
- [Deb12a] P. Debye, *Annalen der Physik*, **344**, 789–839, 1912.
- [Deb12b] P. Debye, *Phys. Z.*, **3**, 97–100, 1912.

- [Ens97] C. Enss und S. Hunklinger, Incoherent tunneling in glasses at very low temperatures, *Phys. Rev. Lett.*, **79**(15), 2831–2834, 1997.
- [Ens05] Christian Enss und Siegfried Hunklinger, *Low temperature physics*, Springer, Berlin ; Heidelberg [u.a.], 2005.
- [Esq92] P. Esquinazi, R. König, und F. Pobell, Acoustic properties of amorphous SiO₂ and PdSiCu, and of crystalline ag, NbTi and ta at very low temperatures, *zpb*, **87**, 305–321, 1992.
- [Esq98] P. et al. Esquinazi, *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, Springer, Heidelberg, 1998.
- [Hun74] S. Hunklinger, Ultrasonic in amorphous solids, *Proc. Ultrasonic Symp. (IEEE)*, 1974.
- [Hun76] S. Hunklinger und W. Arnold, *Physical Acoustics*, volume 12, Academic, New York, 1976.
- [Hun77] S. Hunklinger, *Adv. Solid State Physics XVII*, Vieweg, Braunschweig, 1977.
- [Jäc72] J. Jäckle, On the ultrasonic attenuation in glasses at low temperatures, *Z. Physik*, **257**, 1972.
- [Kim04] Yong-Hamb Kim, *Thermodynamics of low temperature detectors*, Dissertation, Brown University, 2004.
- [Kub85] Ryogo Kubo, *Nonequilibrium statistical mechanics*, volume 31 of *Springer series in solid state sciences ; 31*, Springer, Berlin, 1985.
- [Nag04] P. Nagel, A. Fleischmann, S. Hunklinger, und C. Enss, Novel isotope effects observed in polarization echo experiments in glasses, *Phys. Rev. Lett.*, **92**(24), 245511, 2004.
- [Pet08] Mihai Petrovici, Dielektrische eigenschaften von gläsern bei tiefen temperaturen, 2008.
- [Phi72] W. A. Phillips, Tunneling states in amorphous solids, *jlt*, **7**(3/4), 351–360, 1972.
- [Pob07] Frank Pobell, *Matter and methods at low temperatures*, Springer, Berlin ; Heidelberg [u.a.], 2007.
- [Rei86] P. J. Reijntjes, W. van Rijswijk, G. A. Vermeulen, und G. Frossati, Comparison of a glass thermometer against a nuclear orientation thermometer in high magnetic fields, *Review of Scientific Instruments*, **57**(7), 1413–1415, 1986.

- [Rog97] S. Rogge, D. Natelson, B. Tigner, und D. D. Osheroff, Nonlinear dielectric response of glasses at low temperature, *Phys. Rev. B*, **55**(17), 11256–11262, 1997.
- [Ste73] R. B. Stephens, Low-temperature specific heat and thermal conductivity of noncrystalline dielectric solids, *Phys. Rev. B*, **8**(6), 2896–2905, 1973.
- [Sto95] Jürgen T. Stockburger, Milena Grifoni, und Maura Sasseti, Nonlinear acoustic response of glasses in the tunneling model, *Phys. Rev. B*, **51**(5), 2835–2843, 1995.
- [Str98] P. Strehlow, C. Enss, und S. Hunklinger, Evidence for a phase transition in glasses at very low temperature: A macroscopic quantum state of tunneling systems?, *Phys. Rev. Lett.*, **80**(24), 5361–5364, 1998.
- [Str00] P. Strehlow, M. Wohlfahrt, A. G. M. Jansen, R. Haueisen, G. Weiss, C. Enss, und S. Hunklinger, Magnetic field dependent tunneling in glasses, *Phys. Rev. Lett.*, **84**(9), 1938–1941, 2000.
- [Swa89] E. T. Swartz und R. O. Pohl, Thermal boundary resistance, *Rev. Mod. Phys.*, **61**(3), 605–668, 1989.
- [Tow76] Peter D. Townsend, John C. Kelly, und N. E. Hartley, *Ion implantation, sputtering and their applications*, Acad. Pr., London, 1976.
- [Wö2] Alois Würger, Andreas Fleischmann, und Christian Enss, Dephasing of atomic tunneling by nuclear quadrupoles, *Phys. Rev. Lett.*, **89**(23), 237601, 2002.
- [Wei95] Robert Weis, *Messung der dielektrischen Eigenschaften wechselwirkender Tunnelsysteme bei tiefen Temperaturen am Beispiel von KCl:Li*, Dissertation, Universität Heidelberg, 1995.
- [Woh01] Wohlfahrt, *Untersuchung der dielektrischen Tieftemperaturanomalien von Mehrkomponentengläsern in Magnetfeldern*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2001.
- [Wür94] Alois Würger, Mode-coupling theory for relaxation of coupled two-level systems, *Z. Phys. B*, **94**, 1994.
- [Zel71] R. C. Zeller und R. O. Pohl, Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids, *Phys. Rev. B*, 1971.

Danksagung

Zum Abschluss möchte ich meinen herzlichen Dank an alle richten, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Im Besonderen danke ich

PROF. CHRISTIAN ENSS für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, den immer sehr angenehmen Umgang bei Situationen jeglicher Art sowie die regelmäßigen Motivationsschübe zur Fortsetzung der Arbeit,

meinem Betreuer ANDREAS FLEISCHMANN für das sorgfältige Korrekturlesen dieser Arbeit unter erschwerten Umständen, sein offenes Ohr bei sämtlichen Fragen sowie deren Antworten rund um die Tieftemperaturphysik,

ANDREAS REISER, für die nahezu lückenlose Verorgung mit flüssigem und ziemlich kaltem Helium sowie sofortige Hilfe bei Stromausfällen im Labor und ausgefallenen Pumpen,

RUDOLF EITEL, für die präzise, schnelle und unkomplizierte Hilfestellung bei technischen Problemen jeglicher Art sowie der Versorgung mit flüssigem Helium,

LOREDANA FLEISCHMANN, für ihre immer herzliche und aufmunternde Art,

MANFRED V. SCHICKFUSS und GERNOT KASPER dafür, dass sie mich an ihrer unerschöpflichen Erfahrung teilhaben ließen und für die Ruhe, die sie bei jeder Gruppensitzung ausstrahlten,

der elektronischen Werkstatt, besonders ROLF WEIDNER, für die Fertigung des x. Kabels der y. Sorte, die Durchsuchung des Instituts sowie des Internets nach den perfekten Leitern und den besonderen Mühen, die die Crimpzange verursacht hat,

SIEGFRIED SPIEGEL, mit dem richtigen Tipp zur richtigen Zeit um jedes Werkstück optimal zu zerspanen,

der mechanischen Werkstatt, für die Fertigung des neuen Aufbaus sowie verschiedenen Kleinaufträgen zwischendurch,

THOMAS WOLF, für die Arbeiten im Reinraum zur Herstellung der Kammstruktur,

RALF ACHENBACH, für die Hilfe am Bonder und das Interesse, welches meinem Projekt entgegengebracht wurde.

Ein herzliches Dankeschön gilt außerdem allen Diplomanden und Doktoranden, mit denen diese 13 Monate sehr angenehm gestaltet wurden,

Meinen Büromitbewohnern DANIEL ROTHFUSS, JENS SCHINDELE, MARIUS HEMPEL und SANDRA JENEWEIN, die sich für alle meine Probleme interessierten und sich auch bei den blöden Fragen nie zu schade für eine Antwort waren. Außerdem, besonders Daniel, für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

SEBASTIAN KEMPF, dem Joker bei sämtliche physikalischen, technischen und EDVlastigen Problemstellungen, sowie vielen Unterhaltungen abseits der Physik.

Meinen Mitstreitern im Labor ANGELA HALFAR, CELINE RÜDIGER, DANIEL ROTHFUSS und besonders MASOOMEH BAZRAFESHAN für das entspannte gemeinsame Schrauben und der Überwindung aller Schwierigkeiten rund um den Kryostaten.

Den weiteren F3'lern FLORIAN KLOTZ, GUDRUN FICKENSCHER, LENA MAERTEN und MIHAI PETROVICI.

Den Bolos ANDREAS BURCK, ANDREAS PABINGER, CHRISITAN DOMESLE, CHRISTIAN HÖHN, CHRISTIAN PIES, JP PORST, MATIAS RODRIGUES, RICHARD WELDLE, SEBASTIAN KEMPF, SÖNKE SCHÄFER und STEFAN LAUSBERG für die Beantwortung sämtlicher Reinraumfragen, jeder Menge Spaß und unzähligen Kickermatches mit anschließenden versöhnlichen Kaffeerunden.

Neben Personen, die direkt mit meiner Arbeit konfrontiert wurden, möchte ich meinen Dank richten an

DANIEL ROTHFUSS, DANIEL WEBER, LEO PÖTTINGER, MARIUS HEMPEL, SEBASTIAN NOEBEL und STEFFEN WETZEL für die perfekte Zusammenarbeit bei sämtlichen Zetteln, Klausuren und Prüfungen.

CLEMENS KALCKREUTH, DAVID ZIUPA, NICOLAUS LEMMERTZ, SARAH WOLLONG und SASCHA DIETSCHKE für alle gemeinsamen Erlebnisse in den vielen Jahren Freundschaft sowie den seelischen Beistand im vergangenen Jahr.

IRIS STROMEREDER für die vielen intensiven Momente die wir bereits nach wenigen Monaten entgegen jedem Stress und allen Hindernissen zusammen erleben konnten.

MEINEN ELTERN, die mir das Studium überhaupt erst ermöglicht haben und mir bei allen Problemen abseits des Studierens immer eine große Hilfe waren.

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 03.11.2008

.....
(Michel Kinzer)