# RUPRECHT-KARLS-UNIVERSITÄT HEIDELBERG



Paul Faßl

Überprüfung des Modells der spektralen Diffusion mit Hilfe von Polarisationsechomessungen am Borsilikat-Glas BK7

Bachelor-Arbeit

Dezember 2010

KIRCHHOFF-INSTITUT FÜR PHYSIK

# Fakultät für Physik und Astronomie Universität Heidelberg

BACHELOR-ARBEIT im Studiengang Physik

vorgelegt von

Paul Faßl

geboren in Gießen

2010

# Überprüfung des Modells der spektralen Diffusion mit Hilfe von Polarisationsechomessungen am Borsilikat-Glas BK7

Die Bachelor-Arbeit wurde ausgeführt von Paul Faßl am

Kirchhoff-Institut für Physik in Heidelberg

unter der Betreuung von

Herrn Prof. Dr. C. Enss

# Überprüfung des Modells der spektralen Diffusion mit Hilfe von Polarisationsechomessungen am Borsilikat-Glas BK7

Bei Temperaturen unter 1 K werden die physikalischen Eigenschaften von Gläsern durch atomare Tunnelsysteme bestimmt. Vieler dieser Eigenschaften können im phänomenologischen Standardtunnelmodell erfolgreich beschrieben werden. Das Modell der spektralen Diffusion berücksichtigt die Wechselwirkungen der Tunnelsysteme untereinander und macht Vorhersagen für den Verlauf des daraus resultierenden Zerfalls der Echoamplitude bei Polarisationsechoexperimenten. Aus Messungen des Echozerfalls in Zweipuls- und Dreipuls-Polarisationsechoexperimenten lassen sich Informationen über die Stärke dieser Wechselwirkungen, die Verteilung der Asymmetrieenergie der untersuchten Tunnelsysteme und den Einfluss von Relaxationsprozessen gewinnen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte durch Echo-Experimente am Borsilikat-Glas BK7 bei Temperaturen zwischen 7 mK und 70 mK das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion sehr gut bestätigt werden. Anhand des unerwartet schnellen Zerfalls bei großen Pulsabständen und tiefen Temperaturen wurden zwei Abschätzungen für die obere Grenze einer hypothetischen minimalen Asymmetrieenergie in BK7 ermittelt. Desweiteren wurden aus Messungen der  $\tau_1$ -Relaxation Werte für die Kopplungskonstanten  $\gamma_l$  und  $\gamma_t$  in BK7 bestimmt, die gut mit bisher berichteten übereinstimmen. Durch Messungen bei sehr großen Pulsabständen und höheren Temperaturen wurde ein Zeitbereich des Echozerfalls erreicht, welcher nicht mehr durch das Kurzzeitlimit des Modells der spektralen Diffusion beschrieben werden kann. Der in diesem zweiten Zeitbereich vorhergesagte langsamere Zerfall stimmt sehr gut mit den gemessenen Daten überein.

# Verification of spectral diffusion model using polarisation echo experiments on borosilicate glass BK7

At temperatures below 1 K the properties of amorphous solids are determined by atomic tunneling systems. Many of these properties can be successful described by the phenomenological standard tunneling model. The spectral diffusion model, which accounts for the interaction between these tunneling systems, predicts the shape of the resulting decay of the echo ampltidue in polarisation echo experiments. Through measurements of the echo decay in two-pulse and three-pulse polarisation echo experiments, one can derive information about the strength of this mutual interaction, the distribution of the asymmetry energy of the examined tunneling systems and the influence of relaxation processes. By performing echo experiments on the borosilicate glass BK7 at temperatures between 7 mK and 70 mK, the short time limit of the spectral diffusion model could be verified very well. From the unexpected fast decay at longer pulse seperations and low temperatures, two estimations for a hypothetic minimum asymmetry energy in BK7 were determined. Furthermore measurements of the  $\tau_1$ -relaxation yielded values for the coupling constants  $\gamma_l$  and  $\gamma_t$  in BK7, which agree with preexisting data. In measurements with very long pulse seperations and at higher temperatures, a time regime was reached, which can no longer be described by the short time limit of the spectral diffusion model. The predicted slower decay of the echo decay in this second time regime very well agrees with the measured data.

# Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen	3
2.1 Amorphe Festkörper bei tiefen Temperaturen	3
2.2 Standardtunnelmodell	4
2.3 Dielektrische Zweipuls-Polarisationsechos	6
2.4 Spektrale Diffusion und Relaxation	9
3 Eigenschaften des Experiments	13
3.1 Experimenteller Aufbau	13
3.1.1 Probenhalter	13
3.1.2 Integration im Kryostaten	14
3.1.3 Elektronik zum Erzeugen und Auslesen des Echos	15
3.2 Verwendete Probe	17
4 Analyse der Daten	19
4.1 Echosignal und Rauschen	19
4.2 Auswertung der Daten	22
4.2.1 Temperaturabhängigkeit des Echo-Zerfalls	22
4.2.2 Überprüfung des theoretischen Modells	23
4.2.3 Abschätzung der Relaxationszeit der resonanten Tunnelsysteme	27
5 Zusammenfassung	33
Literaturverzeichnis	35
Danksagung	37

# 1. Einleitung

Bei Temperaturen unter 1 K gibt es einen grundlegenden Unterschied im dielektrischen, akustischen und thermischen Verhalten von Gläsern im Vergleich zu ihren kristallinen Gegenstücken [ZP71]. Diese anomalen Eigenschaften werden von der strukturellen Unordnung in Gläsern und den daraus resultierenden niederenergetischen Anregungen, den sogenannten Tunnelsystemen, verursacht. Im Rahmen des erfolgreichen Standardtunnelmodells ([Phi72], [AHV72]) werden diese Tunnelsysteme phänomenologisch als Doppelmuldenpotentiale angenähert und bilden quantenmechanische Zweiniveausysteme mit einer breiten Energieverteilung.

Als geeignetes experimentelles Verfahren zur Untersuchung der Eigenschaften dieser Tunnelsysteme bei tiefen Temperaturen wurden an Gläsern Zweipuls-Polarisationsechoexperimente durchgeführt. Aus dem Abnahmeverhalten der Echoamplitude in Abhängigkeit des Pulsabstandes und der Temperatur lassen sich Informationen über die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander und der Verteilung ihrer Asymmetrieenergie gewinnen. Das Modell der spektralen Diffusion ([KA62], [HH74], [BH77]) versucht den Zerfall der Echoamplitude mit den Annahmen aus dem Standardtunnelmodell zu erklären.

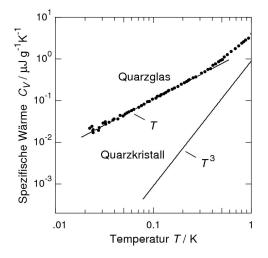
Um die Gültigkeit des Modells der spektralen Diffusion in Gläsern zu überprüfen, wurden in dieser Arbeit Zweipuls-Polarisationsechomessungen bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 70 mK durchgeführt. Hierfür wurde der in [Schw10] verbesserte experimentelle Aufbau verwendet und zusätzlich ein 20-dB Dämpfungsglied auf der Sendeseite bei  $T < 1\,\mathrm{K}$  kurz vor dem Resonator eingebaut. Dadurch konnten genaue Messungen bis zu sehr großen Pulsabständen durchgeführt werden. Mit Hilfe dieser Messungen wurde die Gültigkeit des Kurzzeitlimits der spektralen Diffusion untersucht und außerdem die Existenz von Tunnelsystemen mit sehr kleiner Asymmetrieenergie überprüft. Weiterhin wurde am Ende dieser Arbeit eine Dreipuls-Polarisationsechomessung bei  $T = 7\,\mathrm{mK}$  durchgeführt, deren Zerfall auf der selben Zerfallskonstante basiert wie der bei der Zweipuls-Echomessung, jedoch stärker von der  $\tau_1$ -Relaxation der untersuchten Tunnelsysteme abhängt. Hiermit konnte der Einfluss dieser Relaxation auf den Zweipuls-Echozerfall abgeschätzt werden.

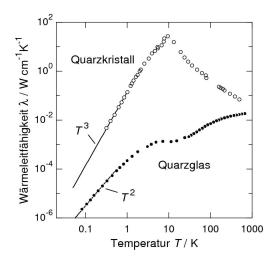
Im zweiten Kapitel werden die theoretischen Grundlagen erläutert, die zur Diskussion des Experiments und der Auswertung notwendig sind. Dazu gehört insbesondere das Standardtunnelmodell und das Modell der spektralen Diffusion. Zusätzlich wird noch auf die physikalischen Hintergründe von Polarisationsechoexperimenten eingegangen. Im dritten Kapitel wird der experimentelle Aufbau dargestellt, der zur Durchführung der Echoexperimente verwendet wurde. Im vierten Kapitel erfolgt nach einer kurzen Analyse der Genauigkeit der Messung eine Überprüfung der Daten auf Übereinstimmung mit dem Modell der spektralen Diffusion. Hierbei wird unter anderem auf die im Standardtunnelmodell angenommene Verteilung der Asymmetrieenergie eingegangen. Im fünften Kapitel werden die Ergebnisse zusammengefasst.

# 2. Theoretische Grundlagen

# 2.1 Amorphe Festkörper bei tiefen Temperaturen

Festkörper lassen sich anhand ihrer strukturellen Ordnung in zwei Kategorien einordnen. Kristalline Festkörper besitzen eine sich wiederholende Gitterstruktur, in denen jedes Atom eine wohldefinierte Position im Kristallgitter besitzt. Im Gegensatz dazu besitzen amorphe Festkörper nur eine Nahordnung. Durch zu schnelles Abkühlen einer Schmelze kann sich bei Gläsern keine Fernordnung einstellen und die Abstände und Orientierungen der Atome bzw. Moleküle zueinander variieren. Es ist seit längerem bekannt, dass solche amorphen Festkörper insbesondere bei tiefen Temperaturen ein grundlegend anderes Verhalten zeigen als ihre kristallinen Gegenstücke.





**Abbildung 2.1:** Spezifische Wärme von Quarzglas und Quarzkristall als Funktion der Temperatur, nach [Hun77].

**Abbildung 2.2:** Wärmeleitfähigkeit von Quarzglas und Quarzkristall in Abhängigkeit von der Temperatur, nach [ZP71].

Das anerkannte Debye-Modell sagt für Kristalle bei tiefen Temperaturen eine  $T^3$ -Abhängigkeit der spezifischen Wärme und der Wärmeleitfähigkeit voraus. Bei Gläsern beobachtet man eine stark vom Debye-Modell abweichende Temperaturabhängigkeit dieser beiden Größen. Diese Unterschiede werden in den Abbildungen 2.1 und 2.2 repräsentativ im Falle von  $\mathrm{SiO}_2$  dargestellt. Es ist zu sehen, dass die spezifische Wärme von Quarzglas etwa linear mit der Temperatur verläuft, während die Wärmeleitfähigkeit proportional zu  $T^2$  ist. Außerdem weichen die Absolutwerte beider Größen stark von denen des Quarzkristalls ab. Um die große Wärmekapazität von Gläsern zu erklären wurde gefolgert, dass bei tiefen Temperaturen zusätzliche niederenergetische Anregungen mit einer breiten Energieverteilung existieren müssen. Da sie weiterhin die Wärmeleitfähigkeit schwächen, müssen sie einerseits lokalisiert sein und außerdem als Streuzentren für Gitterschwingungen, den Phononen wirken.

Diese Anregungen sind mit der Unordnung der Glasstruktur verbunden. Diese erlaubt es einigen Atomen oder Atomgruppen mehr als eine Gleichgewichtslage mit ähnlicher Energie einzunehmen. Dies ist in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt. Bei genügend tiefen Temperaturen reicht die thermische Energie der Atome nicht mehr aus, um die Potenzialbarriere zu einer anderen Gleichgewichtslage zu überwinden. Somit haben die Atome nur noch die Möglichkeit durch die Barriere zu tunneln. Das Standardtunnelmodell, welches im nächsten Abschnitt behandelt wird, bietet eine phänomenologische Beschreibung dieser Tunnelsysteme und ist das bisher erfolgreichste Modell um die thermischen, elektrischen und akustischen Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen zu erklären.

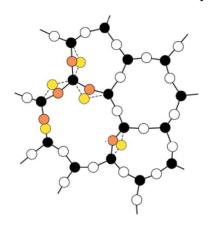


Abbildung 2.3: Zweidimensionale schematische Darstellung einer Glasstruktur: einige Atome können mehrere nahezu entartete Gleichgewichtslagen einnehmen.

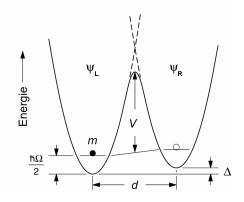
### 2.2 Standardtunnelmodell

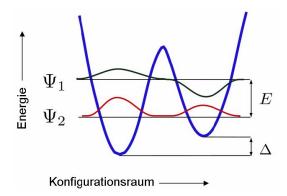
Das Standardtunnelmodell ([AHV72], [Phi772]) beschreibt die Tunnelsysteme als Teilchen der Masse m, die zwischen den Minima eines Doppelmuldenpotenzials mit Asymmetrieenergie  $\Delta$  und Potenzialbarriere V tunneln. Solch ein Potenzial, mit den Wellenfunktionen  $\Psi_L$  und  $\Psi_R$  der jeweils isolierten harmonischen Potenziale, ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Der Abstand der beiden Potenzialminima wird durch einen Konfigurationsparameter d beschrieben. Im Doppelmuldenpotenzial entsteht ein Überlapp von  $\Psi_L$  und  $\Psi_R$ , sodass diese im jeweils anderen potenzial einen endlichen Wert annehmen und ein Tunneln möglich wird. Es existiert ein symmetrischer und ein antisymmetrischer Überlagerungszustand aus  $\Psi_L$  und  $\Psi_R$ . Der neue Grundzustand wird durch die symmetrische Wellenfunktion  $\Psi_1$ , der angeregte Zustand durch die antisymmetrische Wellenfunktion  $\Psi_2$  beschrieben. Zusammen bilden sie ein Zweizustandssystem, welches in Abbildung 2.5 zu sehen ist.

Die sogenannte Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$ , die vom Überlapp zwischen  $\psi_L$  und  $\psi_R$  abhängig ist, kann mit der WKB-Methode näherungsweise bestimmt werden [Rüd08]:

$$\Delta_0 \approx \hbar \Omega e^{-\lambda}.\tag{2.1}$$

Dabei ist  $\frac{1}{2}\hbar\Omega$  die Grundzustandsenergie einer einzelnen Mulde und  $e^{-\lambda}$  die Tunnelwahrscheinlichkeit. Der Tunnelparameter  $\lambda$  eines Doppelmuldenpotenzials mit Hilfe





**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotenzials.

**Abbildung 2.5:** Darstellung der Wellenfunktionen  $\psi_1$  und  $\psi_2$  im Doppelmuldenpotenzial.

der Potenzialbarriere V, der Tunnelteilchenmasse m und dem Muldenabstand d in WKB-Näherung kann angegeben werden als:

$$\lambda \approx \frac{d}{2\hbar} \sqrt{2mV}.\tag{2.2}$$

Die Energieaufspaltung E des Zweizustandssystem ist mit diesen Parametern gegeben durch:

$$E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2},\tag{2.3}$$

In der Ortsdarstellung, also in der Basis  $(\psi_L, \psi_R)$ , wird das Tunnelsystem durch den Hamiltonian

$$\hat{\mathcal{H}}_{TS} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix}$$
 (2.4)

beschrieben. In der Basis  $(\psi_1, \psi_2)$  des überlagerten Systems ist der Hamiltonian

$$\hat{\mathcal{H}'}_{TS} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0\\ 0 & -E \end{pmatrix}. \tag{2.5}$$

In einem amorphen Festkörper existiert eine große Anzahl solcher Tunnelsysteme mit breit verteilten Energieaufspaltungen und Tunnelparametern. Im Standardtunnelmodell wird eine konstante Verteilung der Parameter  $\Delta$  und  $\lambda$  angenommen, dass heißt alle zulässigen Werte dieser Parameter sind gleichwahrscheinlich.

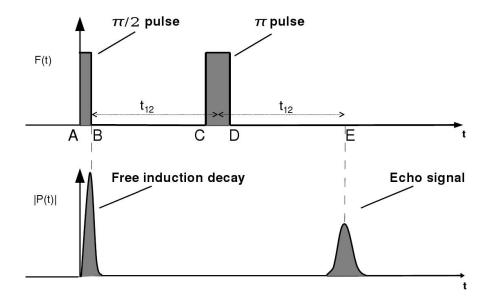
$$P(\Delta, \lambda) \, d\Delta \, d\lambda = \overline{P} \, d\Delta \, d\lambda \tag{2.6}$$

Hierbei ist  $\overline{P}$  eine materialabhängige Konstante.

Das Standardtunnelmodell kann viele Eigenschaften von Gläsern bei tiefen Temperaturen beschreiben. Bei einigen Phänomenen scheitert das Modell allerdings, da es die Wechselwirkung der Tunnelsysteme untereinander außer Acht lässt. Zum Untersuchen dieser Wechselwirkungen eignen sich insbesondere Zweipuls-Polarisationsexperimente, welche im nächsten Abschnitt beschrieben werden. In dieser Arbeit wird

unter anderem versucht, die Verteilung des Parameters  $\Delta$  zu überprüfen, insbesondere ob ein vom Standardtunnelmodell abweichendes  $\Delta_{\min} > 0$  existiert.

# 2.3 Dielektrische Zweipuls-Polarisationsechos



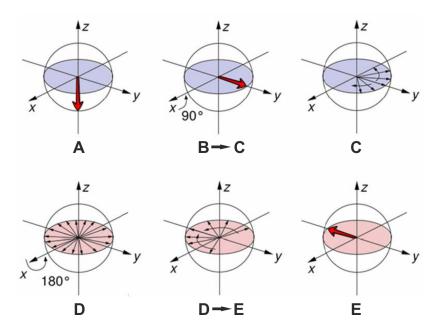
**Abbildung 2.6:** Zeitlicher Ablauf der elektrischen Hochfrequenz-Pulse sowie der makroskopischen Polarisation der Glasprobe.

In einem Zweipuls-Polarisationsexperiment wird eine Glasprobe zwei elektrischen Hochfrequenz-Pulsen der Frequenz  $\nu$  und Pulsabstand  $\tau_{12}$  ausgesetzt. Das elektrische Feld koppelt an das permanente Dipolmoment von Tunnelsystemen deren Energieaufspaltung E ungefähr der Anregungsfrequenz entspricht  $E=k_{\rm B}T\approx h\nu$  und regt diese resonant an. Solch eine Puls-Sequenz wird  $\frac{\pi}{2}$ - $\pi$ -Sequenz genannt. Die zwei Pulse und die makroskopische Polarisation im Glas sind schematisch in Abbildung 2.6 dargestellt. Da die Messungen bei Temperaturen von wenigen mK stattfinden, geht man davon aus, dass sich vor der Pulssequenz fast alle dieser Tunnelsysteme im Grundzustand befinden. Weiterhin wird vereinfacht angenommen, dass das Dipolmoment eines Tunnelsystems je nachdem in welcher Mulde sich das Teilchen befindet entweder parallel oder antiparallel zum externen Feld ist. Geht man von einem komplett symmetrischen Potenzial aus, ist der Beitrag zur makroskopischen Polarisation vor dem Puls Null, da sich das Teilchen in jeder der beiden Mulden gleich häufig aufhält.

Das Prinzip des Experiments ist dem in der Kernspinresonanz (NMR) sehr ähnlich. Dort werden die Zweizustandssysteme durch die Spin  $\frac{1}{2}$ -Kerne anstatt unserer Tunnelsysteme gebildet und es wird eine makroskopische Magnetisierung beobachtet. Die zeitliche Entwicklung der Gesamtwellenfunktionen wird dort in einem Pseudospinraum (Abbildung 2.7) dargestellt. In unserem Fall bezeichnen die Erwartungswerte

 $\langle S_x \rangle$  die makroskopische Polarisation,  $\langle S_y \rangle$  die quantenmechanische Phase und  $\langle S_z \rangle$  die Besetzungszahldifferenz der Niveaus.

Wie schon erwähnt befinden sich zu Anfang alle resonanten Tunnelsysteme im durch die Wellenfunktion  $\Psi_1$  gegebenen Grundzustand, dargestellt in Abb.2.7(A) und die makroskopische Polarisation ist Null. Nun wird kurzzeitig ein elektrisches Hochfrequenzsfeld in Form eines  $\frac{\pi}{2}$ -Pulses mit Frequenz  $\omega_{\rm EF}$  and die Probe angelegt. Dieser  $\frac{\pi}{2}$ -Puls zwingt die angesprochenen Tunnelsysteme in einen gemischten Zustand von  $\Psi_1$  und  $\Psi_2$ . Aus der Addition der beiden Wellenfunktionen ergibt sich, dass sich die Tunnelteilchen mit größerer Wahrscheinlichkeit in einer der Mulden aufhalten. Dies führt zu einer makroskopischen Polarisation, die mit  $\omega_{\rm EF}$  oszilliert, siehe Abb.2.7(B). Nach dem Puls fällt die Polarisation im sogenannten Free Induction Decay (FID) jedoch schnell wieder ab. Aufgrund der Kürze der Pulse wird nach der Unschärferelation ein großes Energie- bzw. Frequenzspektrum an Tunnelsystemen vom Puls angesprochen. Diese besitzen unterschiedliche Frequenzabstände  $\omega_{\rm d}$  zur Trägerfrequenz:  $\omega_{\rm d} = \omega_{\rm TS} - \omega_{\rm EF}$ . Aufgrund der freien Zeitentwicklung nach dem ersten Puls verlieren die Systeme ihre Phasenbeziehung zueinander, was in Abb.2.7( $B\rightarrow C$ ) zu sehen ist, wenn man beachtet, dass die Polarisationsvektoren in unterschiedliche Richtungen um die z-Achse rotieren. Nach einer Zeit  $\tau_{12}$  wird ein  $\pi$ -Puls an die Probe angelegt. Dadurch kehrt sich die Phase aller Tunnelsysteme um  $180^{\circ}$  um (Abb.2.7(C $\rightarrow$ D)). Für die Zweiniveausysteme entspricht dies einer Zeitinversion, weshalb die Phase der Tunnelsystme nach dem Puls wieder aufeinander zuläuft (Abb.2.7(D $\rightarrow$ E)). Nach der Zeit  $2\tau_{12}$  sind die Systeme somit wieder kohärent in Phase und wir beobachten eine makroskopische Polarisation, das Echo-Signal. Dies ist in Abb.2.7(E) zu sehen.



**Abbildung 2.7:** Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Gesamtwellenfunktion im Pseudospinraum.

Für die Herleitung der Echoamplitude betrachtet man das elektrische Wechselfeld,

dass zur Anregung genutzt wird. Dieses ist durch  $\mathbf{F}(t) = \mathbf{F}_0 \cos(\omega_{\text{EF}} t)$  gegeben. Es wird angenommen, dass das Feld einen Einfluss auf die Asymmetrieenergie  $\Delta$  hat. Für kleine Variationen von  $\Delta$  kann das Problem durch Störungstheorie erster Ordnung berechnet werden. Es ergibt sich eine oszillierende Variation

$$\delta \Delta = \delta \mathbf{p} \mathbf{F}(t), \tag{2.7}$$

wobei  $\delta p$  die Änderung des elektrischen Dipolmoments bezeichnet. Der Hamiltonoperator aus Gleichung 2.4 muss nun durch einen Störoperator ergänzt werden:

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{ges}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \frac{1}{2} \delta \vec{\boldsymbol{p}} \cdot \vec{\boldsymbol{F}} \cos(\omega_{\text{EF}} t) . \tag{2.8}$$

In der Basis  $(\psi_1, \psi_2)$  nimmt dieser die Form

$$\hat{\mathcal{H}'}_{ges} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} + \frac{1}{E} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \frac{1}{2} \delta \vec{\boldsymbol{p}} \cdot \vec{\boldsymbol{F}} \cos(\omega_{EF} t)$$
 (2.9)

an. Das Ziel der Herleitung ist der Erwartungswert des Polarisationsoperators  $\hat{P}_z$ . Im Eigensystem der Tunnelsysteme besitzt dieser die Gestalt

$$\hat{P}'_z \propto \frac{1}{E} \begin{pmatrix} \Delta & \Delta_0 \\ \Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix}$$
 (2.10)

Die explizite Berechnung von  $\left\langle \psi \left| \hat{P}_z' \right| \psi \right\rangle$  anhand der Zeitentwicklung der Wellenfunktionen wurde schon in anderen Arbeiten (z.B. [Baz08], [Schw10]) durchgeführt und wird an dieser Stelle ausgelassen. Das Ergebnis für die Polarisation eines spezifischen Tunnelsystems mit Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$  und Frequenzabstand  $\omega_d$  für  $t > \tau_{12}$  lautet:

Hierbei sind  $t_1$  und  $t_2$  die Länge des ersten bzw. zweiten Pulses. Die ersten vier Faktoren beschreiben die Amplitude und der letzte ist ein Phasenfaktor. Es ist leicht zu erkennen, dass der Phasenfaktor für alle resonanten Tunnelsysteme unabhängig von ihrer Energieaufspaltung  $\hbar\omega_{\rm TS}$  zur Zeit  $t=2\tau_{12}$  gleich 1 wird, weshalb zu dieser Zeit eine makroskopische Polarisation, das Echo-Signal, zu beobachten ist. Die Amplitude wird für  $\Omega_{\rm R}t_1=\frac{\pi}{2}$  und  $\Omega_{\rm R}t_2=\pi$  maximal. Daher stammen die Bezeichnungen  $\frac{\pi}{2}$ - und  $\pi$ -Puls. Aufgrund der breiten Verteilung von  $\Delta_0$  muss man für den genauen Wert der Echoamplitude noch über alle möglichen Werte von  $\Delta_0$  integrieren, dies muss bei einer späteren Berechnung beachtet werden.

Bis zu diesem Zeitpunkt würde man davon ausgehen, dass die Echoamplitude zur Zeit  $t = 2\tau_{12}$  genau so groß sein sollte wie direkt nach dem ersten Puls, da wieder

alle der angeregten Tunnelsysteme in Phase sein sollten. In Experimenten ist jedoch eine Abnahme der Echoamplitude mit zunehmendem Pulsabstand zu beobachten. Dies resultiert aus der Vereinfachung, dass wir die Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit ihrer Umgebung außer Acht gelassen haben. In Wirklichkeit finden solche Wechselwirkungen auch bei den im Experiment vorliegenden tiefen Temperaturen statt, welche zur teilweisen Phasenzerstörung der Tunnelsysteme in der Zeit zwischen den zwei Pulsen und somit zur Reduktion der Echoamplitude führen. Im nächsten Abschnitt wird das Modell der spektralen Diffusion vorgestellt, mit welchem dieses Phänomen beschreiben werden soll. Außerdem sind wir von unendlich langen Relaxationszeiten der angeregten Tunnelsysteme ausgegangen. Auch dieser Punkt wird im nächsten Kapitel angesprochen.

# 2.4 Spektrale Diffusion und Relaxation

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird der Zerfall der Echoamplitude bis zu bisher unerreichten Pulsabständen von  $1200 \,\mu s$  bei  $7.5 \,\mathrm{mK}$  gemessen. Zumindest soll überprüft werden, ob die Relaxationszeit  $\tau_1$  der untersuchten Tunnelsysteme einen wesentlichen Einfluss auf die gemessene Echoamplitude hat. Aus der mittleren freien Weglänge der Phononen ergibt sich für die Relaxationszeit  $\tau_1$  nach [Jäck72]:

$$\tau_1 = K \left( 1 - \left( \frac{\Delta}{E} \right)^2 \right)^{-1} \frac{1}{E^3} \tanh \left( \frac{E}{2k_{\rm B}T} \right)$$
 (2.12)

Die Größe K stellt hierbei eine materialabhängige Konstante dar. Anhand der breiten Verteilung von  $\Delta$  für eine feste Energie E der Tunnelsysteme erkennt man, dass die Relaxationszeiten der Tunnelsysteme über mehrere Größenordnungen variieren. Bei einer expliziten Berechnung des Einflusses auf den Echozerfall muss somit über alle diese Zeiten integriert werden.

Einen weitaus größeren Einfluss jedoch hat die erwähnte Wechselwirkung der resonant angeregten Tunnelsysteme mit ihrer Umgebung. Eine gute theoretische Beschreibung dieser Prozesse liefert das Modell der spektralen Diffusion (siehe [BH77] und [KA62]). Dieses teilt die in amorphen Festkörpern existenten Zweiniveausysteme in zwei Gruppen auf. Zu Gruppe A gehören alle mit den Hochfrequenz-Pulsen resonant angeregten Tunnelsysteme. Alle anderen Tunnelsysteme, die klar in der Überzahl sind, gehören zu Gruppe B. Aufgrund der endlichen Temperatur T > 0 können bei einem Teil der B-Systeme thermische Übergänge zwischen ihrem angeregten Zustand und dem Grundzustand stattfinden. Dabei ändern die Systeme die Felder in ihrer Umgebung. Da die Niveaus der Tunnelsysteme unterschiedliche elektrische Dipolmomente besitzen, werden auch die elektrischen Felder beeinflusst. Eine analoge, sogar leicht dominierende Wechselwirkung findet über Gitterverzerrungen statt, die das Verzerrungsfeld in der Umgebung der B-Systeme ändern. Diese Feldänderungen führen zu Fluktuationen der Asymmetrieenergie  $\Delta$  der Systeme aus Gruppe A. Somit bewirken sie eine zeitabhängige Änderung der Energieaufspaltung dieser Systeme.

Um eine theoretische Beschreibung dieser Wechselwirkung zu geben greift man wieder auf das Modell der Spin  $\frac{1}{2}$ -Teilchen zurück. Die betrachteten Tunnelsysteme haben genau wie die Spin  $\frac{1}{2}$ -Teilchen zwei Energiezustände  $-\frac{1}{2}E$  und  $+\frac{1}{2}E$ , allerdings mit einer breiten Verteilung der Energiewerte E. Die oben genannten Einflüsse auf die Energieaufspaltung der Tunnelsysteme aus Gruppe A können anhand einer dipolaren Spin-Spin Wechselwirkung zwischen einem Spin i und einem Spin j beschrieben werden. Vernachlässigt man die Nicht-Diagonalelemente, welche Übergänge zwischen den Niveaus beschreiben, hat der Hamilton-Operator für solch eine Wechselwirkung die Form [BH77]:

$$\hat{\mathcal{H}}_{ij} = J_{ij} S_z^i S_z^j \tag{2.13}$$

Hierbei ist  $S_z$  der Spinoperator mit den Eigenwerten  $\pm \frac{1}{2}$  und  $J_{ij}$  beschreibt die Stärke der Kopplung:

$$J_{ij} \cong C_{ij} \left(\frac{\Delta^i}{E^i}\right) \left(\frac{\Delta^j}{E^j}\right) \left(\frac{1}{r_{ij}^3}\right)$$
 (2.14)

Die materialabhängige Konstante  $C_{ij}$  hängt vom Tensor des Deformationspotenzials ab und  $r_{ij}$  bezeichnet den Abstand zwischen einem Tunnelsystem i und j. Ordnet man den A-Tunnelsystemen den Index i und den B-Systemen den Index j

zu, nimmt der modifizierte Hamiltonian eines Tunnelsystems dann die Form

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{eff}}^{i} = E^{i} S_{z}^{i} + \sum_{j \neq i} J_{ij} S_{z}^{i} S_{z}^{j} = E_{\text{eff}}^{i} S_{z}^{i}$$
(2.15)

an.

Wir betrachten nun ein Subensemble von Tunnelsystemen, deren Energieaufspaltung  $E_i$  zum Zeitpunkt t=0 gerade den Wert  $E_i(t=0)=\hbar\omega_{\rm EF}$  beträgt. Nach einer Zeit t werden alle Energieaufspaltungen von diesem Wert abweichen. Die Standardabweichung  $\sigma(E_i,t)$  ist hierbei näherungsweise eine mit der Zeit monoton wachsende Funktion. Die aufgesammelte Phase der Tunnelsysteme zwischen den ersten beiden Pulsen ist somit nicht mehr exakt gleich der Phase, die zwischen dem zweiten Puls und dem Echo aufgesammelt wird. Dieser Phasenunterschied wird größer je länger der Pulsabstand ist, weshalb ein Abfall der Echoamplitude mit zunehmendem Pulsabstand zu beobachten ist.

Im Hamiltonian bedeutet dies, dass  $S_z^j$  und somit  $E_{\text{eff}}^i$  von der Zeit abhängig sind. In diesem Modell wird die Relaxationszeit  $T_1$  der A-Tunnelsysteme als lang gegenüber der Messzeit angenommen, sodass  $S_z^i$  als konstant gesetzt wird. Das Modell sagt für die Wahrscheinlichkeit, dass ein A-Tunnelsystem mit  $E_{\text{eff}}^i(t=0) = \hbar\omega_0$  mit  $\omega_0 \approx \omega_{\text{EF}}$  zum Zeitpunkt t die Energieaufspaltung  $E_{\text{eff}}^i = \hbar\omega$  besitzt eine Lorentz-Verteilung voraus:

$$p(\omega, t) d\omega = \frac{\Delta \omega(t)}{\pi(\omega - \omega_0)^2 + [\Delta \omega(t)]^2} d\omega$$
 (2.16)

Dabei gilt für die zeitabhängige Diffusionsweite  $\Delta\omega(t)$ , wenn man alle Spins aus Gruppe A und B in die Rechnung mit einbezieht nach [BH77] und [KA62]:

$$\hbar \Delta \omega(t) \propto \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| \right\rangle_{A} \left\langle \left| \frac{\Delta}{E} \right| n_f(E, \frac{\Delta}{E}, t) \right\rangle_{B}$$
(2.17)

Der Faktor  $\langle |\frac{\Delta}{E}| \rangle_{\rm A}$  beschreibt die Mittelung über alle resonanten Tunnelsysteme der Gruppe A und  $\langle |\frac{\Delta}{E}| n_f(E,\frac{\Delta}{E},t) \rangle_{\rm B}$  mittelt über alle Spinflips der Tunnelsysteme aus Gruppe B. Dabei ist  $n_f(E,\frac{\Delta}{E},t)$  die Dichte der Tunnelsysteme aus Gruppe B, die im Zeitraum t eine ungerade Anzahl mal den Zustand gewechselt haben. Diese weist eine breite Verteilung auf, da alle B-Systeme mit  $2k_{\rm B}T \approx E \geq 0$  in die Rechnung mit einbezogen und über alle Asymmetrieenergien  $\Delta$  für ein festes E integriert werden muss. In einem Zweipuls-Echoexperiment gilt für die Zeitabhängigkeit der Polarisation eines einzelnen Tunnelsystems i (siehe [BH77] und [KA62]):

$$P_i(t=2\tau) \propto \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^4 \left\langle \exp\left[i\int_0^\tau \omega(t')dt' - i\int_\tau^{2\tau} \omega(t')dt'\right]\right\rangle$$
 (2.18)

Hierbei wurde auf die Terme in Gleichung 2.11 die Kleinwinkelnäherung  $\sin\frac{\Omega_{\mathrm{R}}t_{1,2}}{2}\approx\frac{\Omega_{\mathrm{R}}t_{1,2}}{2}\propto\frac{\Delta_{0}}{E}$  und  $\cos\frac{\Omega_{\mathrm{R}}t_{1}}{2}\approx1$  angewendet, die für dieses Experiment in guter Näherung gültig ist [Baz08]. Die Echoamplitude A eines Ensembles aus Tunnelsystemen ergibt sich aus der Summe der Beiträge  $P_{i}$  aller Tunnelsysteme i aus Gruppe A. Aufgrund der großen Anzahl der Tunnelsysteme und der Verteilung des Parameters  $\Delta$ , kann die Summe mithilfe von Gleichung 2.3 in ein Integral über die Asymmetrieenergie  $\Delta$  umgeformt werden:

$$A(t=2\tau_{12}) \propto \int_{0}^{1} d\frac{\Delta}{E} \left(1 - \left(\frac{\Delta}{E}\right)^{2}\right)^{2} P\left(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12}\right)$$
 (2.19)

Dabei ist  $P(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12})$  die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Werte von  $\frac{\Delta}{E}$  in Abhängigkeit des Pulsabstandes  $\tau_{12}$ . In [KA62] und [HH74] wurde  $P(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12})$  für drei verschiedene Bereiche von  $\tau_{12}$  bestimmt.

Sei  $\tau_{\min}^B$  die kürzeste der Relaxationszeiten  $\tau_1$  (Gleichung 2.12 mit  $\Delta_0 = E$  und  $E = 2k_BT$ ) der Systeme aus Gruppe B. Es wurde von [KA62] gezeigt, dass wenn  $\tau_{12}$  klein im Vergleich zu  $\tau_{\min}^B$  ist, aus der Lorentz-Verteilung von  $p(\omega,t)$  eine gaußförmige Verteilung von  $\Delta$  bzw.  $\frac{\Delta}{E}$  folgt. [HH74] haben später gezeigt, dass es in zwei weiteren Zeitbereichen andere Verteilungen gibt. Zusammenfassend sind diese drei Bereiche wie folgt beschrieben [EWLH96]:

Im ersten Bereich ist  $\tau_{12} \ll \tau_{\min}^{\dot{B}}$  und für die Verteilung der Asymmetrieenergie  $\Delta$  gilt:

$$P(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12}) = \exp(-m(T)\frac{\Delta}{E}\tau_{12}^2)$$
(2.20)

Nach [BH77] erwarten wir  $m(T) = m_0 \cdot T^4$ , wobei  $m_0$  eine materialabhängige Konstante ist. In diesem Bereich entspricht die Größe  $m(T) \cdot \frac{\Delta}{E}$  exakt  $\Delta \omega(t)$  aus Gleichung 2.17 im Limit kurzer Pulsabstände.

Der zweite Bereich ist erreicht, wenn  $\tau_{12} \gg \tau_{\min}^B$ 

$$P(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12}) = \exp(-\pi^{-\frac{1}{3}} m(T) \frac{\Delta}{E} \tau_{\min}^{B}(T) \tau_{12}). \tag{2.21}$$

Zu beachten ist, dass dieser Bereich eine untere Grenze für den realen Echoverlauf darstellt und ihn nicht exakt repräsentieren muss.

Der dritte Bereich tritt ein, wenn  $\tau_{12}$  deutlich größer als die längste Relaxationszeit  $\tau_{\max}^B$  ist:

$$P(\frac{\Delta}{E}, \tau_{12}) = \exp(-\sqrt{8\pi^{-1}\tau_{\min}^{B^3}(T)} \ m(T) \frac{\Delta}{E} \sqrt{\tau_{12}})$$
 (2.22)

Da die Relaxationszeiten wie schon erwähnt über mehrere Größenordnungen variieren, ist dieser Bereich in Experimenten nicht zu erreichen.

Allgemein erkennt man, dass die weniger symmetrischen Tunnelsysteme zu erst außer Phase geraten, sodass für größere Pulsabstände nur noch die sehr symmetrischen Systeme mit  $\Delta \approx 0$  zum Echo beitragen. Der Echoverlauf in diesem Bereich ist deshalb sehr gut geeignet um die angenommene Verteilung von  $\Delta$  zu überprüfen.

Zusätzlich muss berücksichtigt werden, dass die Anzahl der Tunnelsysteme, die zur Echoamplitude beitragen, proportional zur Besetzungszahldifferenz der Tunnelsysteme vor der Pulssequenz ist. Diese als Funktion der Temperatur T lautet

$$\frac{\Delta N}{N} = \tanh\left(\frac{E}{2k_{\rm B}T}\right) \quad , \tag{2.23}$$

wobei N die Anzahl der Tunnelteilchen beschreibt.

# 3. Eigenschaften des Experiments

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Zerfall der Echoamplitude bei Zweipuls-Polarisationsexperimenten aufgrund von spektraler Diffusion bei bisher unerreichten Pulsabständen gemessen. Dabei variiert die Echoamplitude für jede Messung vom kürzesten bis zum längsten Pulsabstand über ca. 5 Größenordnungen.

Um solche kohärenten Effekte in Gläsern untersuchen zu können, werden ausreichend tiefe Temperaturen benötigt, damit die Besetzungszahldifferenz der Tunnelsysteme nach Gleichung 2.23 groß genug ist und der Einfluss der Wechselwirkung mit den B-Tunnelsysteme nicht zu groß wird, da das Echo sonst innerhalb sehr kurzer Zeit nicht mehr messbar ist. Beides ist gut erfüllt, wenn die Temperatur nicht viel höher als die Tunnelaufspaltung der angeregten Systeme ist, welche in unserem Experiment ca. 50 mK entspricht.

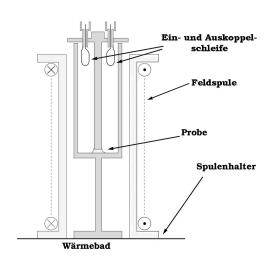
Weiterhin sollte der elektronische Aufbau möglichst rauscharm sein. Insbesondere muss darauf geachtet werden, dass keine kohärenten Störsignale im Experiment eingekoppelt werden bzw. dass das statistische elektronische Rauschen größer ist als solche Störsignale. Damit kann durch Erhöhen der Anzahl der Mittelungen auch bei sehr kleinen Amplituden ein vernünftiges Rausch-Signal-Verhältnis erreicht werden. In diesem Kapitel werden die Funktionsweise des verwendeten Resonators, dessen Integration im Kryostaten und der elektronische Aufbau außerhalb des Kryostaten erklärt. Weiterhin werden die Eigenschaften der für dieses Experiment verwendeten Glasprobe BK7 erläutert. Die tiefen Temperaturen von bis zu 7 mK werden mit einem <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He-Verdünnungskryostaten erzeugt. Dessen Funktionsweise kann im Detail z.B. in [Pob07] oder [Ens05] nachgelesen werden und wird hier nicht näher erläutert.

# 3.1 Experimenteller Aufbau

### 3.1.1 Probenhalter

In Abbildung 3.1 ist ein schematischer Schnitt durch den verwendeten Probenhalter dargestellt. Dieser besteht aus einem vergoldetem Kupfer-Hohlzylinder (Innenradius: 18 mm; Höhe: 70 mm), der oben und unten mit einer Abdeckung aus Kupfer abgeschlossen ist. Zur besseren Wärmeabfuhr ist der Boden über einen massiven Kupferstab an die Experimentierplattform des Kryostaten thermisch gekoppelt. Vom Deckel aus ragt mittig ein massiver Kupfer-Zylinder (Durchmesser: 8 mm) nach unten bis ca. 4 mm über den Boden. In dieser Lücke befindet sich die Probe. Solch eine Anordnung bildet einen Topfkreisresonator, welcher als ein LC-Schwingkreis gesehen werden kann. Dabei bildet die Unterseite des Innenleiters mit dem Boden und dem dazwischen befindlichen Glas die Kapazität und die Zylinderwand mit dem Innenleiter die Induktivität. Wird der Resonator mit einer passenden Frequenz angeregt, bildet sich eine stehende Welle im Resonator, wobei am Ort der Probe die Amplitude des elektrischen Feldes maximal ist. Die erste Mode des Resonators hat eine

Wellenlänge, die etwa viermal so lang wie die Resonatorhöhe ist, weshalb solch ein Resonator auch  $\lambda/4$ -Resonator genannt wird. Die Bestimmung der Resonanzfrequenz erfolgt über die Aufnahme einer Resonanzkurve. Bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  beträgt die Resonanzfrequenz mit der von uns verwendeten Probe ca. 892 MHz bei einer Güte von Q=110. In dem Temperaturbereich in dem die Messungen durchgeführt wurden, sollte diese Frequenz ungefähr konstant bleiben.



**Abbildung** 3.1: Schematischer Aufbau des Probenhalters

Zum Ein- bzw. Auskoppeln der hochfrequenten elektromagnetischen Signale werden zwei versilberte Kupferschleifen verwendet. Diese ragen über zwei mit Teflon isolierte Öffnungen in den Resonator hinein und werden so ausgerichtet, dass sie möglichst senkrecht zu den Magnetfeldlinien stehen um die Kopplung zu maximieren. Die Einkoppelschleife wurde etwas kleiner gewählt als die Auskoppelschleife, um Rauschbeiträge von bei Zimmertemperatur betriebenen Geräten zu minimieren. Der Resonator wird von einer supraleitenden Spule umgeben, mit der bei Bedarf homogene Magnetfelder am Ort der Probe erzeugt werden können. Diese Option wurde im Rahmen dieses Arbeit nicht verwendet.

### 3.1.2 Integration im Kryostaten

In Abbildung 3.2 ist der Aufbau des Kryostaten mit seinen verschiedenen Kühlstufen und dem im unteren Teil angebrachten Resonator schematisch dargestellt. Der hier gezeigte Vakuumtopf befindet sich in flüssigem Helium bei einer Temperatur von  $T=4,2\,\mathrm{K}$ . Beim oben liegenden 1K-Topf herrschen Temperaturen von ungefähr 1,2 K, beim Verdampfer sind es 0,7 K und in der Mischkammer, an die auch das Experiment thermisch angekoppelt ist, können bis zu 5 mK erreicht werden. Die Mischkammer ist von einem Strahlungsschild aus Kupfer und Blei umgeben um Wärmestrahlung und Magnetfelder abzuschirmen. Durch geregeltes Heizen kann von dieser Basistemperatur ausgehend die Temperatur gezielt erhöht und konstant gehalten werden.

Um die hochfrequenten Signale zum und vom Resonator zu übertragen, werden

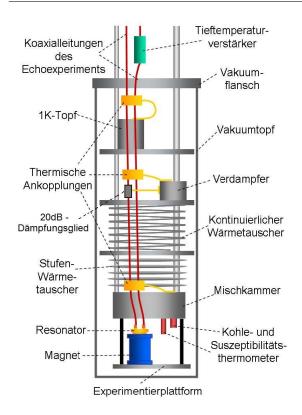


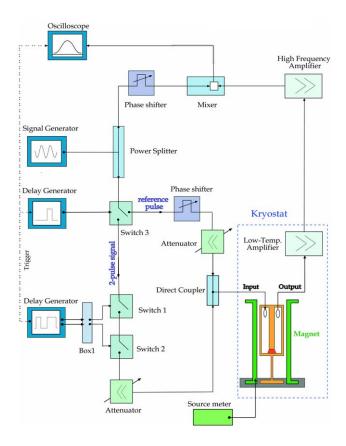
Abbildung 3.2: Skizze des Kryostaten mit verschiedenen Kühlstufen. Auf der Experimentierplattform unten befindet sich das eigentlich Experiment mit dem Resonator.

Niob-Koaxialkabel verwendet, da diese bei Temperaturen unterhalb von 9,2 K supraleitend werden und zudem eine schlechte Wärmeleitfähigkeit besitzen. Desweiteren werden thermische Ankopplungen verwendet [Rüd08], die Wärme von den Leitungen an den Kryostaten transportieren. Der Tieftemperaturverstärker im flüssigen Helium oberhalb des Vakuumflansches sorgt für eine rauschärmere Verstärkung des ausgekoppelten Signals im Vergleich zu einem Zimmertemperaturverstärker. Zusätzlich wird dadurch auch weniger Rauschen über die Auskoppelschleife in den Resonator zurück gesendet. Um das über die Einkopplungsschleife in den Resonator gesendete Rauschen zu verringern, wurde im Vergleich zu [Schw10] anstatt eines 10 dB- ein 20 dB-Dämpfungsglied im Vakuumtopf auf dem Weg zum Resonator unterhalb des 1K-Topfes eingebaut, um dort eine noch bessere Dämpfung des Rauschens der bei Zimmertemperatur betriebenen Geräte zu garantieren. Die Temperatur der Experimentierplattform an der Mischkammer wurde mit dem eingezeichneten Kohlethermometer gemessen.

### 3.1.3 Elektronik zum Erzeugen und Auslesen des Echos

In Abbildung 3.3 ist der elektronische Aufbau skizziert, der für das hochfrequente Signal und die zwei Pulse sorgt und außerdem das Empfangssignal wieder verarbeitet. Die gestrichelten Linien rechts kennzeichnen den Kryostaten, alle Komponenten außerhalb davon werden bei Zimmertemperatur betrieben.

Der Signal-Generator produziert ein kontinuierliches Hochfrequenzsignal mit der Resonanzfrequenz  $f\approx 892\,\mathrm{MHz}$  des Resonators. Durch den Leistungsteiler wird das



**Abbildung 3.3:** Skizze der elektronischen Komponenten zur Erzeugung und zum Nachweis des Echos.

Signal in zwei Teile gleicher Amplitude zerlegt. Der obere Teil dient als Referenzsignal für den Mixer. Dessen Phase kann mithilfe eines Phasenverschiebers auf das durch den Kryostat laufende Signal abgestimmt werden. Der untere Teil des Signals wird durch Schalter 3 entweder nach rechts oder nach unten durchgelassen. Im unteren Pfad werden die zwei Pulse durch zwei weitere Schalter 1 und 2 erzeugt, die von einem Verzögerungsgenerator über Box 1 gesteuert werden. Es werden zwei Schalter verwendet, damit in der Zeit zwischen den Pulsen das Signal besser unterdrückt wird. Die zwei Pulse werden anschließend gedämpft und laufen weiter Richtung Kryostat. Schalter 3 wird von einem zweiten, baugleichen Verzögerungsgenerator gesteuert, wobei er immer mit der steigenden Flanke des zweiten Pulses umgeschaltet wird und dabei einen sogenannten Referenzpuls erzeugt. Dieser kann durch einen Phasenverschieber und ein Dämpfungsglied auf die Größe des Echo-Signals angepasst werden. Der Referenzpuls ist unabhängig von Temperaturschwankungen des Kryostaten und spezifischen Eigenschaften der Probe und sollte über die gesamte Dauer des Experiments konstant sein. Damit kann die Stabilität der Elektronik, vor allem die der Verstärker, überprüft werden. Die zwei hochfrequenten Pulse und der Referenzpuls werden mit dem Richtkoppler zusammengefügt und in den Resonator gesendet. Das Ausgangssignal des Resonators wird verstärkt und mit dem Referenzsignal gemischt.

Dabei werden idealerweise alle hochfrequenten Anteile vom Mixer gefiltert. Als Ausgang ergeben sich die zwei Pulse, das Echo, sowie der Referenzpuls. Anschließend kann das Signal mit Hilfe eines Oszilloskops digitalisiert werden.

### 3.2 Verwendete Probe

Die im Experiment verwendete Probe ist das Glas BK7, auch Borosilikat genannt. Neben SiO<sub>2</sub> (74,8%) besteht es noch aus Na<sub>2</sub>O (10,2%), B<sub>2</sub>O (9,6%), K<sub>2</sub>O (4,7%), BaO (0,76%) und Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0,03%) mit dem jeweiligen molaren Anteil nach [LNHE03] in Prozent. Es hat einen sehr kleinen Wärmeausdehnungskoeffizienten im Vergleich zu anderen Gläsern, weshalb sich das Volumen des Glases bei den von uns betrachteten Temperaturen nicht so stark ändert. Nach [EWLH96] verursachen große Dipolmomente in BK7 eine große Echoamplitude, was somit ideal für das Messen einer Echozerfallskurve ist, da die Amplitude auch bei höheren Temperaturen noch groß genug ist.

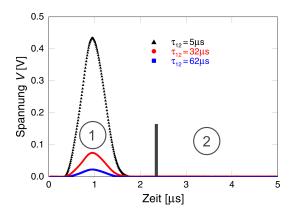
Im Experiment liegt die Probe in einer kleinen Scheibe mit einer Dicke von 0,4 mm vor, die im Resonator die Lücke zwischen innerem Zylinder und Boden ausfüllt.

# 4. Analyse der Daten

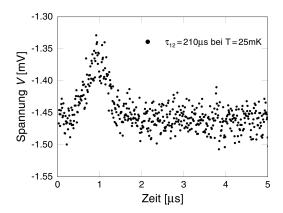
Im Rahmen dieser Arbeit wurden Zweipuls-Polarisationsechoexperimente an dem Glas BK7 bei Temperaturen zwischen 7,5 mK und 70 mK durchgeführt. Dabei wurde der Zerfall der Echoamplitude bis zu größtmöglichen Zeiten gemessen. Zur theoretischen Beschreibung des Zerfalls wurde das Modell der spektralen Diffusion herangezogen. Dadurch konnten die Dynamik der Tunnelsysteme und ihre Wechselwirkung untereinander auf einer bisher nicht erreichten Zeitskala untersucht werden. Weiterhin wurde versucht anhand der Daten bei langen Pulsabständen die Existenz sehr symmetrischer Tunnelsysteme mit  $\frac{\Delta}{E} \ll 1$  zu überprüfen.

Im ersten Teil dieses Kapitels werden die Art und Weise der Messung der Echosignale erläutert und die Eigenschaften des Rauschens untersucht. Im zweiten Teil werden die gemessenen Echozerfälle mit Hilfe von Berechnungen aus dem Modell der spektralen Diffusion analysiert.

# 4.1 Echosignal und Rauschen



**Abbildung 4.1:** Drei Echo-Aufnahmen bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  mit den Pulsabständen  $\tau_{12}=5\,\mu\mathrm{s},\ \tau_{12}=32\,\mu\mathrm{s}$  und  $\tau_{12}=62\,\mu\mathrm{s}.$  Jeder dieser Datensätze ist das Ergebnis einer Mittelung von 2000 Einzelmessungen. In Bereich 1 ist das eigentliche Echo zu sehen. Der Bereich 2 wurde zur Bestimmung des Offsets verwendet.



**Abbildung 4.2:** Gemitteltes Polarisationsecho bei der Temperatur T=25 mK und dem Pulsabstand  $\tau_{12}=210~\mu s~(2\cdot 10^5$  Mittelungen). Hier wurde der Offset in Bereich 2 noch nicht vom Signal abgezogen.

Bei Polarisationsechoexperimenten nimmt die Größe des Echos mit steigender Temperatur T und größer werdendem Pulsabstand  $\tau_{12}$  ab. Die Amplitude fällt dabei in allen später diskutierten Messreihen um etwa fünf Größenordnungen ab. Um bei allen hier betrachteten Temperaturen und Pulsabständen ein gutes Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu gewährleisten, wurden bei jeder Echomessung angemessen viele Ein-

zelmessungen gemittelt.

In Abbildung 4.1 sind drei Echos bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  und kurzen Pulsabständen zu sehen. Hierbei wurde jeweils in Bereich 2 der Mittelwert der Spannung bestimmt und der somit erhaltene Offset vom Gesamtsignal abgezogen. Bereich 1 ist das Integrationsintervall, welches zur Bestimmung der Echoamplitude aller in dieser Arbeit gemessenen Echosignale benutzt wird. Bei den hier gezeigten Kurven reichen wenige Mittelungen aus, um ein gutes Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu erhalten. Bei größeren Pulsabständen und höheren Temperaturen wird die Echoamplitude jedoch sehr schnell klein. Beispielhaft ist hierfür in Abbildung 4.2 ein Echo bei einer Temperatur von  $T=25\,\mathrm{mK}$  und einem Pulsabstand von  $\tau_{12}=210\,\mu\mathrm{s}$  gezeigt. Über dem gesamten Signal liegt ein statistisches elektronisches Rauschen, welches aber aufgrund der hohen Anzahl der Mittelungen  $(2\cdot10^5)$  bereits klein im Vergleich zur Echoamplitude in Bereich 1 ist. Der Offset des Gesamtsignals ist hier gut zu erkennen.

Bei sehr kurzen Pulsabständen von  $\tau_{12} < 15 \mu s$  ist das Echo aufgrund der Nähe zu den verwendeten Pulsen außerdem von einem nicht konstanten Untergrund überlagert [Fis05]. Deshalb wird hier zusätzlich eine Untergrundmessung durchgeführt, indem unter identischen Aufnahmebedingungen nur der zweite Puls gesendet wird. Dieser Untergrund wird vom eigentlichen Echosignal abgezogen.

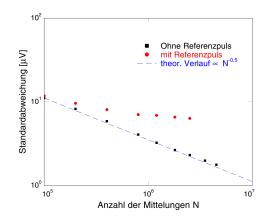


Abbildung 4.3: Gemessene Standardabweichung der Spannungswerte aus Bereich 2 in Abhängigkeit der Mittelungszahl N. Die roten Punkte stammen aus einer Messung mit Referenzpuls, die schwarzen Vierecke aus einer ohne Referenzpuls. Die gestrichelte Linie deutet den theoretisch erwarteten  $\frac{1}{\sqrt{N}}$ -Abfall der Standardabweichung an.

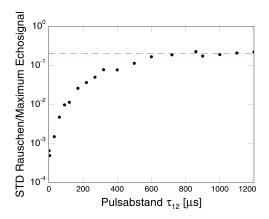


Abbildung 4.4: Verlauf der Standardabweichung (STD) der Rauschamplitude relativ zum Maximum des Echosignals in Abhängigkeit des Pulsabstandes  $\tau_{12}$  bei T=7.5 mK. Die gestrichelte Linie zeigt die obere gesetzte Grenze für das Verhältnis.

Um ein gutes Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu erreichen, muss die Standardabweichung des Rauschens in Bereich 2 für jeden Pulsabstand möglichst klein im Vergleich zur Echoamplitude sein. Diese sollte theoretisch mit zunehmender Anzahl N der Mittelungen proportional zu  $\frac{1}{\sqrt{N}}$  abnehmen. Um dies zu überprüfen wurden bei einer Temperatur von  $T=55\,\mathrm{mK}$  und einem Pulsabstand von  $\tau_{12}=5\,\mu\mathrm{s}$  ca.

5 Millionen Einzelmessungen durchgeführt. Anschließend wurde über verschiedene Mengen an Einzelmessungen gemittelt und jeweils die Standardabweichung im Bereich 2 bestimmt. Die Messungen wurden mit dem verbesserten Messaufbau, der in [Schw10] beschrieben ist, einmal mit- und einmal ohne Referenzpuls durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.3 zu sehen. Dabei stellen die schwarzen Vierecke die Messung ohne und die roten Punkte die Messung mit Referenzpuls dar. Der theoretisch erwartete  $\frac{1}{\sqrt{N}}$ -Verlauf ist durch die gestrichelte Linie repräsentiert. Man erkennt deutlich, dass bei der Messung ohne Referenzpuls die Standardabweichung dem erwarteten Verlauf gut folgt. Mit Referenzpuls nimmt die Standardabweichung langsamer ab als erwartet. Der Grund hierfür ist, dass zum Schalten des Referenzpulses ein zusätzlicher Verzögerungsgenerator genutzt wird, welcher parasitäre Signale auf den Messleitungen erzeugt. Diese Signale werden an Impedanzsprüngen und Kabelenden reflektiert und sind kohärent mit den beiden Pulsen und somit mit dem Echo [Schw10]. Diese Signale können nicht wie statistisches Rauschen herausgemittelt werden und führen zu einem schlechteren Signal-zu-Rauschen-Verhältnis. Aus diesem Grund wurden die endgültigen Messreihen alle ohne eingekoppelten Referenzpuls durchgeführt, weshalb die Stabilität der Elektronik während einer Messung nicht überprüft werden konnte. Eine genauere Untersuchung der Stabilität dieses Aufbaus wurde jedoch unter anderem in [Baz08] und [Rüd08] durchgeführt.

Die Anzahl der Mittelungen während jeder Messung wurde nun so gewählt, dass das Verhältnis von der Standardabweichung des Rauschens im Bereich 2 zum Maximum des Echosignals (Bereich 1) für jeden Messpunkt maximal ungefähr 20% beträgt. In Abbildung 4.4 ist dieses Verhältnis für die Messreihe bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  in Abhängigkeit vom Pulsabstand dargestellt. Die gestrichelte Linie repräsentiert dabei die obere gesetzte Grenze von 0,2. Bei kleinen Pulsabständen ist das Verhältnis wegen des großen Echosignals sehr klein. Es steigt mit zunehmendem Pulsabstand stark an, weshalb ab bestimmten Pulsabständen die Anzahl der Mittelungen erhöht und für einen gewissen Bereich konstant gehalten wurden. Dies ist an den Sprüngen im Verlauf der Datenpunkte zu erkennen. Die Anzahl der Mittelungen für die längsten Pulsabstände betrug ca. 1,5 Millionen, was einer Messzeit von ungefähr 3-6 Stunden pro Messpunkt entspricht. Diese hängt von der bei den verschiedenen Temperaturen gewählten Pulssequenz-Wiederholungsrate ab.

Wie schon erwähnt, wurde in dieser Arbeit als Maß für die Größe der Echoamplitude das Zeitintegral des verstärkten Echo-Spannungssignals in Bereich 1 verwendet. Dieses Integral wird im Folgenden als Echoamplitude A bezeichnet.

# 4.2 Auswertung der Daten

In dieser Arbeit wurde mit den in 4.1 beschriebenen Methoden der Zerfall der Echoamplitude bei sechs verschiedenen Temperaturen gemessen. In diesem Abschnitt werden die gemessenen Daten mit den theoretischen Erwartungen aus dem Modell der spektralen Diffusion verglichen.

### 4.2.1 Temperaturabhängigkeit des Echo-Zerfalls

Die gemessenen Echozerfälle bei Temperaturen von  $7\,\mathrm{mK} < T < 70\,\mathrm{mK}$  sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Um die Temperaturabhängigkeit des Echo-Zerfalls zu untersuchen und diese mit den Erwartungen aus dem Modell der spektralen Diffusion zu vergleichen, wurde versucht, den Zerfall bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  auf die bei anderen Temperaturen gemessenen Daten zu skalieren. Nach Gleichung 2.19 und unter Beachtung der Besetzungszahldifferenz aus Gleichung 2.23 gilt im Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion für den Beitrag zur Echoamplitude eines herausgegriffenen Tunnelsystems mit Asymmetrieenergie  $\Delta$  und Energieaufspaltung E:

$$A(2\tau_{12}, T) \propto \tanh\left(\frac{E}{2k_{\rm B}T}\right) e^{-m_0 T^4 \frac{\Delta}{E} \tau_{12}^2} = A_0(T) e^{-m(T) \frac{\Delta}{E} \tau_{12}^2}$$
 (4.1)

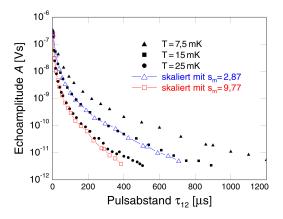
Um nun eine Zerfallskurve  $A(\tau_{12}, T_1)$  auf die bei einer anderen Temperatur  $A(\tau_{12}, T_2)$  zu skalieren, müssen die temperaturabhängigen Parameter  $A_0(T)$  und m(T) angepasst werden. Es ergibt sich:

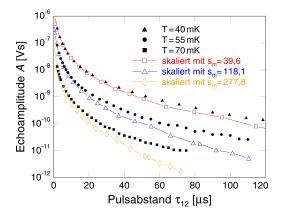
$$A_0(T_2) = \frac{\tanh\left(\frac{E}{2k_{\rm B}T_2}\right)}{\tanh\left(\frac{E}{2k_{\rm B}T_1}\right)} A_0(T_1) =: s_A(T_1, T_2) A_0(T_1)$$
(4.2)

und

$$m(T_2) =: s_m(T_1, T_2)m(T_1).$$
 (4.3)

Zur Anpassung der Besetzungszahldifferenz müssen alle Werte der Kurve  $A(2\tau_{12}, T_1)$  mit dem Faktor  $s_A(T_1, T_2)$  multipliziert werden. Im Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion ist die charakteristische Zeit des gaußförmigen Zerfalls nach 4.1 proportional zu  $m(T)^{-\frac{1}{2}}$ . Deshalb wurden bei der hier diskutierten Skalierung der Daten alle Werte von  $\tau_{12}$  mit dem Faktor  $s_m(T_1, T_2)^{-\frac{1}{2}}$  multipliziert. Der Faktor  $s_m(T_1, T_2)$  wurde hierbei so gewählt, dass die Kurven bei kurzen Zeiten für alle Temperaturen möglichst gut übereinstimmen. Die Temperaturabhängigkeit der so erhaltenen Streckfaktoren  $s_m(T_1, T_2)$  kann später mit den Vorhersagen aus dem Modell der spektralen Diffusion verglichen werden. Nach [BH77] gilt in diesem Modell  $s_m(T_1, T_2) = \frac{T_2^4}{T_1^4}$ . Das Ergebnis dieser Skalierung ist in Abbildung 4.5 zu sehen. Dabei sind die skalierten Kurven durch die offenen Symbole dargestellt. Die gezeigten Werte für  $s_m(T=7,5\,\mathrm{mK},T_2)$  entsprechen der jeweils besten Übereinstimmung der Kurven. Bei  $T=15\,\mathrm{mK}$  stimmt die skalierte Kurve bis zu Pulsabständen von 500  $\mu$ s noch sehr gut mit den gemessenen Daten überein. Für die höheren Temperaturen werden für längere Pulsabstände





**Abbildung 4.5:** Gemessener Echo-Zerfall bei sechs verschiedenen Temperaturen. Die skalierten Kurven sind mit Angabe des Skalierungsfaktors  $s_m(T=7.5 \text{ mK}, T_2)$  durch die offenen Symbole dargestellt.

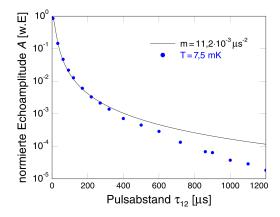
Abweichungen zwischen den gemessenen Daten und den skalierten Kurven deutlich. Diese Abweichungen werden mit steigender Temperatur größer und treten bei immer kürzeren Pulsabständen auf. Somit ist es nicht möglich, die Temperaturabhängigkeit des Echo-Zerfalls für alle Pulsabstände anhand der hier beschriebenen einfachen Skalierung zu erklären. Die möglichen Gründe für dieses Verhalten werden im nächsten Abschnitt erläutert. An den Werten der Skalierungsfaktoren erkennt man, dass bei den tiefsten hier gezeigten Temperaturen die Erwartung  $m(T) \propto T^4$  nicht erfüllt wird. Für die höheren Temperaturen nähert sich das Verhalten dieser Erwartung an. Eine genauere Analyse der Temperaturabhängigkeit wird im nächsten Abschnitt vorgenommen.

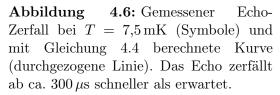
# 4.2.2 Überprüfung des theoretischen Modells

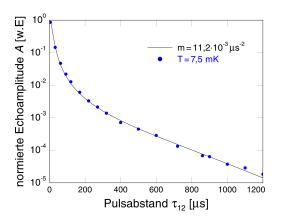
Im nächsten Schritt wurde versucht den Echo-Zerfall anhand des Modells der spektralen Diffusion, welches in Abschnitt 2.4 zusammengefasst wurde, zu beschreiben. Hierfür wurde Gleichung 2.19 im Limit kurzer Pulsabstände genutzt. Substituiert man  $q = \frac{\Delta}{E}$  nimmt die anzupassende Funktion die Form

$$A(2\tau_{12}, T) = A_0 \int_{q=0}^{1} dq \left(1 - q^2\right)^2 e^{-m(T) q \tau_{12}^2}$$
(4.4)

an, wobei  $A_0$  und m(T) die einzigen "freien" Parameter sind. Da hier nicht die absolute Echoamplitude, sondern nur der Verlauf des Zerfalls interessant ist, wird für alle Temperaturen  $A_0 = 1$  gesetzt. Die gemessenen Daten werden anschließend beim kürzesten gemessenen Pulsabstand auf die berechnete Kurve skaliert. Für jede Temperatur  $T_i$  wurde nun versucht ein  $m(T_i)$  zu finden, welches die Daten möglichst gut beschreibt. Zuerst wurden die Daten bei  $T = 7.5 \,\mathrm{mK}$  analysiert. In Abbildung 4.6 sind die berechnete Kurve und die gemessenen Daten zu sehen. Man erkennt, dass der Zerfall der Echoamplitude bis zu einem Pulsabstand von ca. 300  $\mu$ s gut beschrie-







**Abbildung 4.7:** Gemessener Zerfall aus Abb. 4.6 und mit 4.4 und  $q_{\min} = 1, 3 \cdot 10^{-4}$  berechnete Kurve. Der Zerfall kann hiermit auch für große Pulsabstände gut beschrieben werden.

ben werden kann. Hierfür wurde  $m=11,2\,\mu\mathrm{s}^{-2}$  benutzt. Für größere Pulsabstände fällt die gemessene Echoamplitude schneller ab als mit 4.4 vorhergesagt.

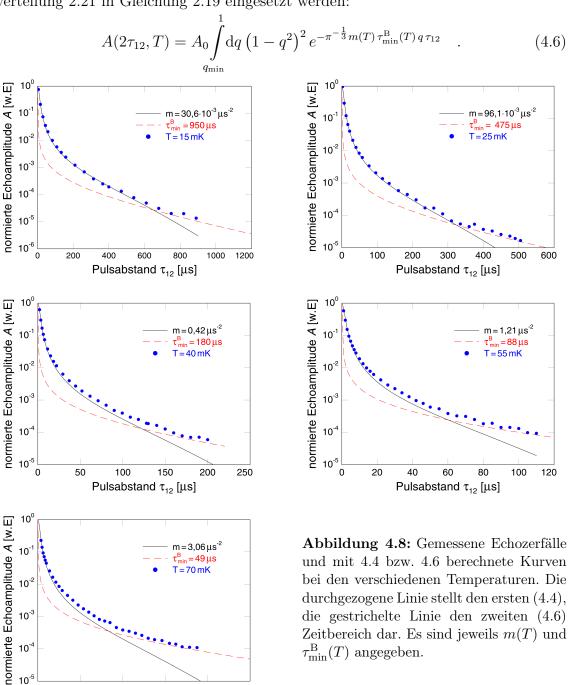
Eine mögliche Erklärung für den schnelleren Zerfall ist, dass entgegen der Annahme im Standardtunnelmodells weniger oder sogar keine sehr symmetrischen Tunnelsysteme mit  $\frac{\Delta}{E}\approx 0$  zum Echo beitragen. Da die Kopplung aus Gleichung 2.14 proportional zur Asymmetrie der resonanten Tunnelsysteme ist, sind für größere Pulsabstände nur noch die sehr symmetrischen Tunnelsysteme kohärent und können zum Echosignal beitragen. Angenommen, es existieren keine resonanten Tunnelsysteme mit  $\Delta < \Delta_{\min}$ , wobei  $\Delta_{\min}$  eine hypothetische minimale Asymmetrieenergie der Tunnelsysteme beschreibt, fällt das Echo somit bei großen Pulsabständen schneller ab, da der Beitrag dieser sehr symmetrischen Tunnelsysteme fehlt. Bei kleinen Pulsabständen ist dieser Einfluss aufgrund der breiten Verteilung von  $\Delta$  sehr klein. Um diesen Ansatz zu verfolgen müssen die Integralgrenzen in Gleichung 4.4 angepasst werden. In Abbildung 4.7 ist ein solcher Fit mit der unteren Integralgrenze

$$q_{\min} = \frac{\Delta_{\min}}{E} = 1.3 \cdot 10^{-4} \quad \Rightarrow \quad \frac{\Delta_{\min}}{k_{\rm B}} \approx 5.56 \,\mu{\rm K}$$
 (4.5)

zu sehen. Der Kurvenverlauf kann mit dieser Anpassung über den gesamten Zeitbereich sehr gut beschrieben werden.

Um konsistent zu bleiben, wurde dieses  $q_{\min}$  von nun an auch für die Fits bei den anderen Temperaturen genutzt. Außerdem wurde m(T) so angepasst, dass der Zerfall bei den anderen Temperaturen möglichst gut beschrieben wird. Die berechneten Kurven für die höheren Temperaturen sind in Abbildung 4.8 zu sehen, wobei der für m(T) gewählte Wert jeweils angegeben ist. Der Echo-Zerfall kann jeweils bis zu einem gewissen Pulsabstand gut beschrieben werden, dann zerfällt das gemessene Echo jedoch langsamer. Die Zeit, bei welcher diese Abweichung beginnt, verschiebt sich bei den höheren Temperaturen zu kürzeren Pulsabständen. Außerdem werden

die Abweichungen mit zunehmendem Pulsabstand immer größer. Eine mögliche Erklärung hierfür ist, dass in den Messungen der zweite Zeitbereich des Modells der spektralen Diffusion erreicht wird und das Kurzzeitlimit somit nicht den gesamten Zeitbereich beschreiben kann. In diesem zweiten Zeitbereich sagt das Modell der spektralen Diffusion einen langsameren Abfall der Echo-Amplitude vorher, was mit dem beobachteten Verhalten übereinstimmt. Hierfür muss die Wahrscheinlichkeitsverteilung 2.21 in Gleichung 2.19 eingesetzt werden:



10<sup>-5</sup>

20

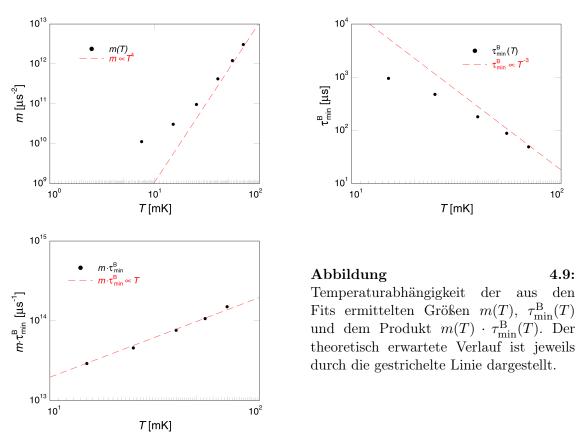
40

60

Pulsabstand  $\tau_{12}$  [ $\mu$ s]

100

In dieses Integral wurde das im ersten Zeitbereich bestimmte m(T) eingesetzt. Die Größe  $\tau_{\min}^B(T)$  bezeichnet die minimale Relaxationszeit der B-Tunnelsysteme und ist a priori ein freier Parameter. Die Ergebnisse dieser Berechnung sind in Abbildung 4.8 zu sehen, wobei das jeweils gewählte  $\tau_{\min}^B(T)$  angegeben ist. Die berechneten Kurven können für große Pulsabstände die gemessenen Echo-Zerfälle für alle Temperaturen gut beschreiben. Bei mittleren Pulsabständen findet ein Übergang statt und keine der beiden Kurven kann den Echo-Zerfall perfekt darstellen, da diese nur die Grenzfälle  $\tau_{12} \ll \tau_{\min}^B(T)$  und  $\tau_{12} \gg \tau_{\min}^B(T)$  beschreiben [HH74]. Unter der Annahme, dass in den Messungen der zweite Zeitbereich erreicht wird, erwartet man für große Pulsabstände eine andere Temperaturabhängigkeit der Zeitkonstante des Echo-Zerfalls. Damit wird klar, dass die Kurven nicht mithilfe eines festen Skalierungsparameters  $s_m(T)$  aufeinander skaliert werden können, wie es in Abschnitt 4.2.1 festgestellt wurde.



Um die Temperaturabhängigkeit der gemessenen Echo-Zerfälle mit der Theorie zu vergleichen, müssen die von der Temperatur abhängigen Paramter m(T) und  $\tau_{\min}^{\rm B}(T)$  näher diskutiert werden. Nach [BH77] gilt  $m(T) \propto T^4$ . Für die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit der B-Tunnelsystme wird Gleichung 2.12 mit der Substitution  $E = 2k_{\rm B}T$  genutzt. Damit erhält man:  $\tau_{\min}^{\rm B}(T) \propto T^{-3}$ . Trägt man die ermittelten Werte von m(T) und  $\tau_{\min}^{\rm B}(T)$  doppellogarithmisch gegen die Temperatur auf, erwartet man somit eine lineare Abhängigkeit. Die aus der Messung ermittelten Werte (Symbole) und der theoretisch erwartete Verlauf (gestrichelte Linie) sind in Abbil-

dung 4.9 dargestellt. Man erkennt, dass sich die Temperaturabhängigkeit für m(T) und  $\tau_{\min}^{\rm B}(T)$  bei den hohen Temperaturen der erwarteten Temperaturabhängigkeit annähert. Zu den niedrigen Temperaturen hin weicht der Verlauf von m(T) und  $\tau_{\min}^{\rm B}(T)$  jedoch stark von den Erwartungen ab. In diesem Temperaturbereich nimmt m(T) langsamer ab als erwartet. Dies bedeutet, dass der Zerfall der EA aufgrund von spektraler Diffusion dort schneller stattfindet als die Theorie es vorhersagt. Auch  $\tau_{\min}^{\rm B}(T)$  zeigt in diesem Bereich eine weniger starke Temperaturabhängigkeit. Für das Produkt der beiden Größen und somit für die Zeitkonstante des zweiten Zeitbereichs der spektralen Diffusion (4.6) wird eine lineare Temperaturabhängigkeit erwartet:  $m(T) \cdot \tau_{\min}^{\rm B}(T) \propto T$ . In Abbildung 4.9 ist zu sehen, dass dieser Verlauf gut erfüllt ist. Somit weichen beide Größen zu niedrigen Temperaturen hin im gleichen Maße von der Erwartung ab, sodass die Abweichungen sich für ihr Produkt kompensieren.

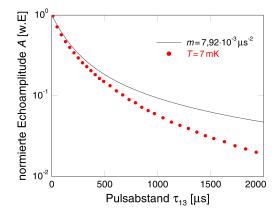
#### 4.2.3 Abschätzung der Relaxationszeit der resonanten Tunnelsysteme

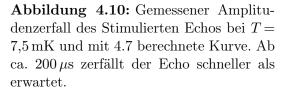
Im Zeitrahmen dieser Arbeit war es leider nicht möglich, die minimale Relaxationszeit  $\tau_{\min}^{A}$  der resonanten A-Tunnelsysteme zu bestimmen. Gegen Ende der Messreihe wurde jedoch eine Dreipulspolarisations-Echomessung bei  $T = 7 \,\mathrm{mK}$  durchgeführt, anhand welcher der Einfluss der Relaxation abgeschätzt werden kann. Die theoretische Beschreibung für diese Art von Echomessung ist in BH77 zu finden, weshalb hier auf eine detaillierte Herleitung verzichtet wird. Die Glasprobe wurde hierbei insgesamt drei  $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen ausgesetzt. Dabei besitzen die ersten beiden Pulse einen konstanten Pulsabstand von  $\tau_{12}$  und der zweite und dritte Puls den zu variierenden Pulsabstand  $\tau_{13}$ . Das sogenannte stimulierte Echo wird zur Zeit  $t = \tau_{13} + 2\tau_{12}$  nach dem ersten Puls beobachtet. Das Echo zerfällt in dieser Art Messung viel langsamer als bei einem Zweipulspolarisationsexperiment. Nur in dem kurzen Zeitintervall zwischen dem ersten und zweiten Puls nutieren die angeregten Tunnelsysteme und können nach dem Modell der spektralen Diffusion außer Phase geraten. Zwischen dem zweiten und dritten Puls erfahren die Tunnelsysteme eine durch spektrale Diffusion hervorgerufene zeitabhängige Energieaufweitung, welche zu einer Abnahme der Echoamplitude mit wachsendem Pulsabstand  $\tau_{13}$  führt. Da der Zerfall der Dreipuls-Echos im Vergleich zu Zweipuls-Echos viel langsamer stattfindet, ist die direkte Relaxation der A-Tunnelsysteme hierbei viel stärker zu beobachten.

Für den erwarteten Zerfallsverlauf aufgrund von spektraler Diffusion gilt nach [BH77] ohne Beachtung von Relaxationsprozessen:

$$A(\tau_{13} + 2\tau_{12}, T) = A_0 \int_{q=0}^{1} dq \left(1 - q^2\right)^2 e^{-m(T) q \tau_{12} \tau_{13}}.$$
 (4.7)

Dabei ist m(T) dieselbe Zeitkonstante wie für die Zweipuls-Echos in Abschnitt 4.2.2 und  $\tau_{12}$  und  $\tau_{13}$  bezeichnen die jeweiligen Pulsabstände. Der Pulsabstand der ersten beiden Pulse wurde in dieser Messung auf  $\tau_{12} = 2 \,\mu$ s festgesetzt. Da der Zerfall der Echoamplitude fast bei der selben aber etwas niedrigeren Temperatur wie der in Abbildung 4.6 gezeigte Zerfall gemessen wurde, wurde hier entsprechend ei-





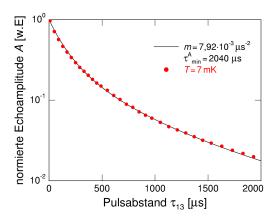


Abbildung 4.11: Gemessener Echozerfall aus Abbildung 4.10 und mit Gleichung 4.9 berechnete Kurve. Dabei wurde  $\tau_{\min}^{A} = 2040 \,\mu s$  verwendet. Der Echozerfall kann hierdurch über den gesamten Zeitbereich sehr gut wiedergegeben werden.

ne etwas kleinere Zerfallskonstante angenommen, welche den Zerfall bei ganz kurzen Pulsabständen am besten beschreibt. Dabei ergab  $m(T) = 7.92 \,\mu\text{s}^{-2}$  die beste Übereinstimmung. Der gemessene Zerfall des stimulierten Echos und eine mit 4.7 berechnete Kurve sind in Abbildung 4.10 dargestellt. Die berechnete Kurve wurde dabei wieder auf den Wert bei  $\tau_{13} = 0 \,\mu s$  normiert und der gemessene Zerfall auf diese Kurve skaliert. Der Einfluss einer minimalen relativen Asymmetrie  $q_{\min}$ auf den Zerfall ist hierbei vernachlässigbar, weshalb  $q_{\min} = 0$  gesetzt wurde. Bis zu ca.  $200\,\mu s$  kann der Zerfall alleine aufgrund von spektraler Difussion beschrieben werden, bei größeren Pulsabständen zerfällt das Echo jedoch schneller als von 4.7 vorhergesagt. Dieser zusätzliche Zerfall ist aufgrund von Relaxations-Prozessen der resonanten Tunnelsysteme zu erklären [BH77]. Um dies zu berücksichtigen, muss 4.7 durch einen exponentiellen Faktor mit der Zerfallskonstanten  $\tau_1$  aus Gleichung 2.12 ergänzt werden. Dabei muss zusätzlich die Verteilung der Relaxationszeiten der resonanten Tunnelsysteme mit fester Energie E vor der Pulssequenz in die Berechnung miteinbezogen werden [Jäck72]. Diese Verteilung kann in eine Verteilung von  $q = \frac{\Delta}{E}$ umgeformt werden. Es gilt:

$$P(q) dq = \overline{P} \frac{1}{1 - q^2} dq.$$
 (4.8)

Setzt man diese Verteilung und den exponentiellen Faktor in 4.7 ein erhält man für den erwarteten Verlauf des Zerfalls:

$$A(\tau_{13} + 2\tau_{12}, T) = A_0 \int_{q=0}^{1} dq \left(1 - q^2\right) e^{-\frac{1-q^2}{\tau_{\min}^A}} e^{-m(T)q\tau_{12}\tau_{13}} . \tag{4.9}$$

Dabei bezeichnet  $\tau_{\min}^{A}$  die minimale Relaxationszeit der A-Tunnelsysteme und ist a priori ein freier Parameter. In Abbildung 4.11 ist ein solcher Fit mit  $\tau_{\min}^{A} = 2040 \,\mu\text{s}$  und

Parameter	Wert
$c_l  [\mathrm{m  s^{-1}}]$	6200
$c_t  [\mathrm{m  s^{-1}}]$	3800
$\rho[\rm kgm^{-3}]$	2510
$n_0 \gamma_l^2 \left[ \frac{\mathrm{erg}}{\mathrm{cm}^3} \right]$	$2,6 \cdot 10^8$
$n_0 \gamma_t^2 \left[ \frac{\mathrm{erg}}{\mathrm{cm}^3} \right]$	$1,2 \cdot 10^8$

**Tabelle 4.1:** Materialkonstanten von BK7 aus [HP75].

T [mK]	$T_{\min}^{A} \left[ \mu \mathbf{s} \right]$	$ au_{ m min}^{ m B} \left[\mu  m s ight]$	$ au_{ ext{min}_{ ext{exp}}}^{B} [\mu  ext{s}]$
7,5	2035	36246	_
15	1826	4530	950
25	1422	979	475
40	1000	239	180
55	759	92	88
70	607	45	49

**Tabelle 4.2:** Mit Gleichung 2.12, den Konstanten aus Tabelle 4.1 und den Werten für  $\gamma_{lt}$  berechnete minimale Relaxationszeiten der A- bzw. B-Tunnelsystemen. Zum Vergleich sind die in Abschnitt 4.2.2 ermittelten Werte angegeben.

der gemessene Zerfall dargestellt. Der Zerfallsverlauf kann damit über den gesamten Zeitbereich sehr gut beschrieben werden.

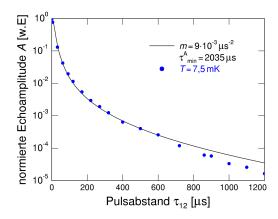
Anhand der für den Fit genutzten minimalen Relaxationszeit  $\tau_{\min}^{A}$  kann eine Abschätzung der Kopplungskonstanten  $\gamma_l$  und  $\gamma_t$  der Tunnelsysteme im Glas BK7 gegeben werden. Für die Variable K in Gleichung 2.12 gilt:

$$K = \left(\frac{\gamma_l^2}{c_t^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{c_t^5}\right) \frac{1}{2\pi\hbar^4\rho} \quad . \tag{4.10}$$

Hier beschreiben  $\gamma_{l/t}$  die Kopplungskonstanten für die Wechselwirkung der Tunnelsysteme mit longitudinalen bzw. transversalen Phononen im Festkörper und  $c_{l/t}$ sind die dazugehörigen Schallgeschwindigkeiten der Phononen. Der Parameter  $\rho$  beschreibt die Dichte des Glases. In Tabelle 4.1 sind diese Konstanten für BK7 angegeben [HP75]. Dabei wurde in [HP75] nur das Produkt  $n_0 \gamma_{l/t}^2$  bestimmt. Die Größe  $n_0$ bezeichnet die Zustandsdichte der untersuchten Tunnelsysteme und ist für BK7 nicht exakt bekannt. Mit der Abschätzung  $\gamma_t = 0.68 \gamma_l$  für BK7 [HP75], wurden die Kopplungskonstanten zu  $\gamma_l = 0.6 \,\mathrm{eV}$  und  $\gamma_t = 0.41 \,\mathrm{eV}$  bestimmt. Diese Werte entsprechen einer Zustandsdichte von  $n_0 = 7.15 \cdot 10^{32} \,\mathrm{erg^{-1} cm^{-3}}$  und stimmen größenordnungsmäßig mit anderen Abschätzungen überein ([HP75], [BM88]). Nimmt man an, dass alle Tunnelsysteme eine gleich starke Kopplung aufweisen, können auf Grundlage dieser Ergebnisse die minimalen Relaxationszeiten  $\tau_{\min}^{A}$  und  $\tau_{\min}^{B}$  für alle Temperaturen mit Gleichung 2.12 berechnet werden. In Tabelle 4.2 sind diese beiden Größen und außerdem die in Abschnitt 4.2.2 ermittelten Werte  $\tau_{\min_{\exp}}^{B}$  für alle Temperaturen aufgelistet. Man erkennt, dass die Relaxationszeiten der resonanten Tunnelsysteme mit dieser Abschätzung zu den höheren Temperaturen hin eine immer kleinere Rolle spielen. Für die Größe  $\tau_{\min}^{\rm B}$  erkennt man für die höheren Temperaturen eine klare Übereinstimmung von Theorie und Experiment. Dies deutet darauf hin, dass der zweite Zeitbereich bei den Messungen in Abschnitt 4.2.2 wirklich erreicht wurde. Zu den niedrigen Temperaturen hin weichen die Werte immer stärker voneinander ab. Dies kann mit dem bei tieferen Temperaturen von  $\tau_{\min}^{\rm B} \propto T^{-3}$  abweichendem Verhalten der experimentell bestimmten Werte erklärt werden (4.2.2).

Als letzter Schritt wurde anhand der ermittelten Werte der Einfluss der Relaxation auf den Zweipuls-Echozerfall bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  aus Abschnitt 4.2.2 abgeschätzt. Dazu wurde Gleichung 4.4 unter Beachtung von Relaxationsprozessen genutzt. Damit erwartet man für den Verlauf des Echozerfalls:

$$A(2\tau_{12}, T) = A_0 \int_{q_{\min}}^{1} dq \left(1 - q^2\right) e^{-\frac{1 - q^2}{\tau_{\min}^A}} e^{-m(T) q \tau_{12}^2}$$
(4.11)



**Abbildung 4.12:** Gemessener Echo-Zerfall bei  $T=7.5\,\mathrm{mK}$  und mit Gleichung 4.11 ( $q_{\mathrm{min}}=0$  und  $\tau_{\mathrm{min}}^{\mathrm{A}}=2035\,\mu\mathrm{s}$ ) berechnete Kurve. Ab ca.  $800\,\mu\mathrm{s}$  zerfällt das Echo schneller als erwartet.

**Abbildung 4.13:** Gemessener Echozerfall aus Abbildung 4.12 und mit Gleichung 4.11 und  $q_{\min} = 6 \cdot 10^{-5}$  berechnete Kurve. Der Echo-Zerfall kann über den gesamten Zeitbereich gut beschrieben werden.

Eine mit  $m=9\cdot 10^{-3}~\mu \rm s^{-2},~\tau_{\rm min}^{\rm A}=2035~\mu \rm s$  und  $q_{\rm min}=0$  berechnete Kurve und der gemessene Zerfall sind in Abbildung 4.12 zu sehen. Bis ca. 600  $\mu \rm s$  kann der starke Echozerfall bei größeren Pulsabständen noch alleine mit 4.11 beschrieben werden, danach fällt das Echo jedoch schneller als vorhergesagt ab. Die beste Übereinstimmung erhält man erneut durch Einführen einer minimalen Asymmetrieenergie  $\Delta_{\rm min}=2,57~\mu \rm K$ . Solch ein Fit mit  $q_{\rm min}=6\cdot 10^{-5}$  ist in Abbildung 4.13 zu sehen. Der Zerfall der Echoamplitude kann damit über den gesamten Zeitbereich beschrieben werden. Somit erhält man bei Berücksichtigung der  $\tau_1$ -Relaxation der A-Tunnelsysteme für die minimale Asymmetrie im Vergleich zur Analyse in Abschnitt 4.2.2 einen etwas geringeren, aber immer noch endlichen Wert.

Insgesamt kann gefolgert werden, dass bei sehr tiefen Temperaturen beides, sowohl Relaxationsprozesse der resonanten Tunnelsysteme sowie eine hypothetisch vorhandene minimale Asymmetrieenergie  $\Delta_{\min}$  für den starken Echozerfall bei großen Pulsabständen verantwortlich sein können. Um die Ergebnisse dieses Abschnitts zu über-

prüfen, sollten einerseits die Relaxationszeit  $\tau_1^A$  mit einer geeigneteren Methode möglichst exakt bestimmt werden, sowie weitere Dreipuls-Messungen bei verschiedenen Temperaturen und Pulsabständen  $\tau_{12}$  durchgeführt und analysiert werden. Festzuhalten bleibt, dass die in dieser Arbeit gemessenen Zerfälle durch die Annahme der Existenz einer minimalen Asymmetrieenergie  $\Delta_{\min}$  insgesamt am besten beschrieben werden können.

# 5. Zusammenfassung

Zweipuls-Polarisationsechoexperimente eignen sich hervorragend zur Untersuchung der Eigenschaften von Tunnelsystemen in Gläsern bei Temperaturen unter 1 K. Das theoretische Modell der spektralen Diffusion berücksichtigt die Wechselwirkungen von Tunnelsystemen untereinander und sagt einen Echoamplitudenzerfall mit zunehmenden Pulsabständen voraus.

Aufbauend auf [Schw10] war das Ziel dieser Arbeit, Zweipuls-Polarisationsechoexperimente an dem Glas BK7 bei Temperaturen unter 70 mK und bis zu bisher unerreichten Pulsabständen durchzuführen, um einerseits die Näherung des Modells für kurze Pulsabstände zu überprüfen und andererseits Informationen über den Bereich des Echozerfalls bei größeren Pulsabständen zu erhalten.

Für das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion erhielten wir insgesamt eine gute Bestätigung. Bei den niedrigsten Temperaturen konnte anhand des Abfalls der Echoamplitude bei großen Pulsabstände eine Abschätzung für eine hypothetische minimale Asymmetrieenergie  $\Delta$  der untersuchten Tunnelsysteme mit  $E\approx 42.8\,\mathrm{mK}\cdot k_\mathrm{B}$  im Glas BK7 gegeben werden. Als obere Grenze für  $\Delta_\mathrm{min}$  konnte dabei ein Wert von  $5.56\,\mu\mathrm{K}\cdot\mathrm{k_B}$  bestimmt werden. Dies ist ein um mehr als eine Größenordnung kleinerer Wert als in [Schw10]. Anhand einer gegen Ende der Arbeit durchgeführten Dreipuls-Polarisationsmessung konnte die minmiale  $\tau_1$ -Relaxationszeit der untersuchten Tunnelsysteme bei  $T=7\,\mathrm{mK}$  abgeschätzt werden. Unter Einbeziehung dieser Relaxation lieferte eine erneute Abschätzung von  $\Delta_\mathrm{min}$  einen Wert von  $2.57\,\mu\mathrm{K}\cdot\mathrm{k_B}$ . Außerdem konnten anhand der ermittelten Relaxationszeit Abschätzungen für die Kopplungskanstanten  $\gamma_{l/t}$  und die Zustandsdichte  $n_0$  der untersuchten Tunnelsysteme gemacht werden. Wir erhielten  $\gamma_l=0.6\,\mathrm{eV}$ ,  $\gamma_t=0.41\,\mathrm{eV}$  und  $n_0=7.15\cdot10^{32}\,\mathrm{erg}^{-1}\mathrm{cm}^{-3}$ . Diese Werte stimmen größenordnungsmäßig gut mit der Literatur überein ([HP75], [BM88]).

Durch das Messen von Echos bei höheren Temperaturen und großen Pulsabständen wurde ein Zeitbereich des Echozerfalls erreicht, der nicht mehr durch das Kurzzeitlimit der spektralen Diffusion beschrieben werden kann. Dabei konnte der im zweiten Zeitbereich der spektralen Diffusion erwartete Zerfallsverlauf bestätigt werden. Weiterhin konnten für die verschiedenen Temperaturen Abschätzungen der minimalen Relaxationszeit der B-Tunnelsysteme angegeben werden.

Es gibt mehrere Möglichkeiten in Zukunft an diese Arbeit anzuknüpfen. In einem ersten Schritt sollte die Relaxationszeit  $\tau_{\min}^A$  der resonanten Tunnelsysteme im Glas BK7 mit einer geeigneten Methode genau bestimmt werden. Damit können der Einfluss der Relaxation auf den Echoamplitudenzerfall bei sehr niedrigen Temperaturen abgeschätzt und die Ergebnisse dieser Arbeit kritisch überprüft werden.

In einem weiteren Schritt erscheint es sinnvoll, Dreipuls-Messungen parallel zu Zweipuls-Messungen durchzuführen. Dadurch können die theoretisch erwarteten Zerfallsverläufe gleichzeitig untersucht und verglichen werden, da diese auf der selben Zerfallskonstanten basieren, beim Dreipuls-Echozerfall die  $\tau_1$ -Relaxation jedoch viel stärker

zu beobachten ist. Weiterhin sollte der zweite Zeitbereich des Echozerfalls durch mehr Mittelungen und damit verbundenen längeren Messzeiten bei noch größeren Pulsabständen untersucht werden, um genauere Informationen über den weiteren Verlauf des Echozerfalls in diesem Bereich zu erhalten.

Ein Ziel hierbei könnte sein, durch Bestätigung der theoretischen Beschreibungen noch mehr Informationen über die Verteilung von  $\Delta$  zu erhalten und die in dieser Arbeit erhaltenen Werte für einen hypothetischen minimalen Wert  $\Delta_{\min}$  der Asymmetrieenergie zu überprüfen und gegebenenfalls noch weiter einzuschränken.

### Literaturverzeichnis

- [AHV72] P. W. Anderson, B. I. Halperin, C. M. Varma Anomalous lowtemperature thermal properties of glasses and spin glasses, Phil. Mag. 25, 1 (1972)
- [Baz08] M. Bazrafshan, Investigation of the microscopic nature of tunnelling systems in amorphous glycerol by two-pulse polarisation echo experiments, PhD thesis, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg (2008)
- [BH77] J. L. Black, B. I. Halperin, Spectral diffusion, phonon echoes, and saturation recovery in glasses at low temperatures, Physical Review B 16(6), 2879 (1977)
- [BM88] J. F. Berret and M. Meissner, Z. Phys. B 70, 65 (1988)
- [Ens05] C. Enss, S. Hunklinger, *Tieftemperaturphysik*, Springer-Verlag (2005)
- [EWLH96] C. Enss, R. Weiss, S. Ludwig, S. Hunklinger, Coherent Echoes in Glasses and Crystals with Point Defects, Czech. J. Phys. 46(6), 3287 (1996)
- [Fis05] C. Fischer Polarisationsexperimente an teildeuterirtem amorphen Glyzerin, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg (2005)
- [HH74] P. Hu, S. R. Hartmann, Theory of spectral diffusion decay using an uncorrelated-sudden-jump model, Physical Review B 9, 1 (1974)
- [Hun77] S. Hunklinger, Adv. Solid State Physics XVII, 1, Ed.: J. Treusch, Vieweg Verlag, Braunschweig (1977)
- [HP75] S. Hunklinger, L. Piché, Propagation of Transverse Sound Waves in Glasses at Very Low Temperatures, Solid State Communications, Vol. 17, 1189-1192 (1975)
- [KA62] J. R. Klauder, P. W. Anderson, Spectral Diffusion Decay in Spin Resonance Experiments, Physical Review 125(3), 912 (1962)
- [LNHE03] S. Ludwig, P. Nagel, S. Hunklinger, C. Enss, Magnetic Field Dependent Coherent Polarization Echoes in Glasses, J. Low Temp. Phys. 131 Nos. 1/2, 89 (2003)
- [Jäck72] J. Jäckle On the Ultrasonic Attenuation in Glasses at Low Temperatures, Z. Physik 257, 212-232 (1972)

- [Schw10] M. Schwarze, Überprüfung des Modells der spektralen Diffusion mit Hilfe von Zweipuls-Polarisationsechomessungen am Borsilikat-Glas Bk7, Bachelor-Arbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg (2010)
- [Phi72] W. A. Phillips, Tunneling states in amorphous solids, J. Low Temp. 7, 351 (1972)
- [Pob07] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures, Springer, Berlin (2007)
- [Rüd08] C. Rüdiger, Polarisationsmessungen an amorphen Mischungen aus teildeuteriertem und natürlichen Glyzerin, Diplomarbeit, Kirchhoff-Institut für Physik, Universität Heidelberg (2008)
- [Wohl01] M. Wohlfahrt, Untersuchung der dielektrischen Temperaturanomalien von Mehrkomponentengläsern in Magnetfeldern
- [ZP71] R. C. Zeller, R. O. Pohl, Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids, Phys. Rev. B 4(6), 2029 (1971)

## Danksagung

Zum Schluss dieser Arbeit möchte ich mich bei all jenen bedanken, die zum erfolgreichen Abschluss dieser Arbeit beigetragen haben:

Herrn Prof. Dr. Christian Enss danke ich für die freundliche Aufnahme in die Arbeitsgruppe und für die Möglichkeit solch ein interessantes Thema als Bachelorarbeit bearbeiten zu können.

DR. ANDREAS FLEISCHMANN danke ich für die vielen hilfreichen Ratschläge und Erklärungen, sowie das umfangreiche Korrekturlesen an den Tagen kurz vor der Abgabe.

DR. MASOOMEH BAZRAFSHAN danke ich für die sehr intensive Betreuung und die große Hilfe bei allen vorhandenen Problemen und Verständnisfragen sowie dem ausführlichen Korrekturlesen. Ohne ihre Hilfe wäre eine solche Bearbeitung des Themas nicht möglich gewesen. Thank you Masoomeh, it was a nice time!!

Ich danke sämtlichen MITGLIEDERN der Arbeitsgruppen F3 und F4 für die immer positive Atmosphäre und Hilfe bei allen auftretenden Problemen, insbesondere ANINE für die interessanten Gespräche unter anderem beim Helium-Füllen. Auch möchte ich noch RUDOLF EITEL für die stets freundliche Versorgung mit Helium danken.

Zu guter Letzt bedanke ich mich bei MEINEN ELTERN, die mich in jeder Phase der Arbeit unterstützt und angetrieben haben. Meiner Freundin GINA danke ich für schöne Zeit an den Wochenenden, in der ich ein wenig Abstand zur Physik gewinnen und neue Motivation schöpfen konnte. Meiner WG danke ich für das Verständnis in anstrengenden Phasen dieser Arbeit, in denen das Putzen und Aufräumen zwischendurch zweitrangig wurde.

# Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbs angegeben Quellen und Hilfsmittel benutz	ständig verfasst und keine anderen als die et habe.
Heidelberg, den 22.12.2010	(Paul Faßl)