



Carolin Wiebke Scholz

---

Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften  
von N-KZFS11 zwischen 300 K und 10 mK bei  
25 MHz

Bachelorarbeit

April 2016



**Fakultät für Physik und Astronomie  
Universität Heidelberg**

Bachelorarbeit in Physik  
erstellt von

**Carolin Wiebke Scholz**  
geboren in Bissendorf, Niedersachsen

**April 2016**



Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften von  
N-KZFS11  
zwischen 300 K und 10 mK  
bei 25 MHz

Diese Arbeit wurde von Carolin Wiebke Scholz am  
Kirchhoff Institut für Physik  
unter Betreuung von  
**Herrn Prof. Dr. Christian Enns**  
ausgeführt



Bei tiefen Temperaturen sind quantenmechanische Tunneleffekte ausschlaggebend für das Verhalten der dielektrischen Funktion amorpher Festkörper, welche mit dem Standardtunnelmodell eine quantitative Beschreibung gefunden haben. In den letzten Jahren sind vermehrt starke Abweichungen vom Modell beobachtet worden, sodass die Theorie von verschiedenen Seiten aus ergänzt wurde. Insbesondere beeinflussen elektrische Kernquadrupolmomente die Tieftemperatureigenschaften. Das hier untersuchte Glas N-KZFS11 ist aufgrund seines großen Anteils an Tantal interessant, das ein großes Kernquadrupolmoment besitzt. Ziel dieser Arbeit ist es, die Messungen an N-KZFS11 bezüglich der komplexen dielektrischen Funktion um den MHz-Bereich zu erweitern und die Lücke zwischen Hochfrequenz- und Niederfrequenzmessungen zu schließen. Dafür wurde die Probe in einem LC-Schwingkreis mit einer Resonanzfrequenz von etwa 25 MHz, in welchem sie als Dielektrikum agiert, zwischen 10 mK und 300 K vermessen. Der erwartete Einfluss des Kernquadrupolmoments auf die dielektrischen Eigenschaften konnte nicht eindeutig bestätigt werden. Bei Vergleich mit vorangegangenen Messungen wurde jedoch eine frequenzunabhängige Steigung des Realteils der dielektrischen Funktion bei Temperaturen unterhalb von 1 K festgestellt, was zu einer guten Beschreibung der Daten durch das Standardtunnelmodell führt.

## dielectric measurements of N-KZFS11 between 10 mK and 300 K at 25 MHz

At low temperatures the dielectric function of amorphous solids is mainly determined by quantum mechanical tunneling effects, as described quantitatively by the standard tunneling model. Due to strong experimental deviations from theory, several amendments were proposed. Especially in glasses with high nuclear quadrupole moments a systematic deviation from theory has been observed. Such a glass is the here investigated N-KZFS11 with a high amount of tantalum as carrier of a large nuclear quadrupole moment. The aim of this work is to close the gap between former dielectric measurements on N-KZFS11 in the low and high frequency range. For this purpose the change in dielectric permittivity of the sample was measured in an LC-resonant circuit with the sample as the dielectric, using the changing resonant frequency and quality factor to determine the complex dielectric function. The expected influence of nuclear quadrupole moments on the dielectric properties is not clearly observed, but in comparison with former measurements a frequency-independent slope of the real dielectric function below 1 K has been found, which allows a good description of the dielectric real part of the glass by the standard tunneling model.





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>theoretische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Standardtunnelmodell . . . . .	3
2.2	Wechselwirkung mit äußerem elektrischen Feld . . . . .	6
2.3	Verlauf der dielektrischen Funktion . . . . .	8
2.4	Einfluss von Kernquadrupolmomenten . . . . .	11
2.4.1	Abweichungen vom Standardtunnelmodell . . . . .	11
2.4.2	Das Kernquadrupolmodell . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>17</b>
3.1	Kryostat und Thermometrie . . . . .	17
3.2	Probe . . . . .	17
3.3	Aufbau des Resonators . . . . .	18
3.4	Signalweg . . . . .	20
3.5	Messung der dielektrischen Funktion . . . . .	21
3.5.1	Erfassung der Messdaten . . . . .	21
3.5.2	Umrechnung in die Messgrößen . . . . .	22
<b>4</b>	<b>Experimentelle Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>25</b>
4.1	Dielektrische Eigenschaften zwischen 20 mK und 300 K . . . . .	25
4.2	Thermalisierung . . . . .	26
4.3	Anregungsleistung . . . . .	27
4.4	Dielektrische Eigenschaften bei tiefen Temperaturen . . . . .	29
4.4.1	Vergleich mit dem Standardtunnelmodell . . . . .	30

4.4.2	Vergleich mit dem Standardtunnelmodell bei allen gemessenen Frequenzen . . . . .	32
4.4.3	Vergleich mit anderen Gläsern . . . . .	34
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>37</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>39</b>

# 1. Einleitung

Die Festkörperphysik unterscheidet zwei Arten von Feststoffen: Die Kristalle, wohlgeordnete Gitter aus Atomen, welche eine Fernordnung besitzen und damit mathematisch gut beschrieben werden können und amorphe Festkörper oder Gläser, welche keine Fernordnung haben und theoretisch weniger leicht zu beschreiben sind.

Bereits 1912 erklärte Debye die Wärmekapazität von Kristallen bei tiefen Temperaturen mithilfe von Gitterschwingungen. Lange wurde angenommen, dass seine Theorie auch für amorphe Festkörper gelte, da die langwelligen Gitterschwingungen, heute bekannt als Phononen bei tiefen Temperaturen nicht von den auf viel kleinerer Skala vorhandenen Strukturunregelmäßigkeiten gestört würden. Dies wurde jedoch von Zeller und Pohl 1971 [Zel71] im Experiment widerlegt.

Amorphe Festkörper unterscheiden sich im Bezug auf ihre Wärmekapazität und Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen deutlich von Kristallen. Zur Erklärung wurde von [And72] und [Phi72] das Standardtunnelmodell entwickelt, welches annimmt, dass in amorphen Festkörpern im Gegensatz zu Kristallen Tunnelsysteme auftreten. Manche Atome haben aufgrund der strukturellen Unordnung im Glas mehrere Gleichgewichtslagen, zwischen welchen sie quantenmechanisch tunneln können. Zur Anschauung sind in Abbildung 1.1 die Struktur eines SiO-Kristalls und eines SiO-Glases schematisch nebeneinander dargestellt. Drei Möglichkeiten der veränderten Gleichgewichtslagen im Glas sind mit A, B und C gekennzeichnet. Bei A und B handelt es sich um Translationsbewegungen einzelner Sauerstoffatome (rot ausgefüllte Kreise) entsprechend orthogonal und parallel zu den Molekülbindungen, bei C um die Rotation einer Gruppe von Atomen um eine Symmetrieachse (veränderte Gleichgewichtspositionen sind orange markiert).

Das Standardtunnelmodell gibt nicht nur im Bereich der Wärmekapazität Vorhersagen, sondern auch für akustische und im Falle Dipolmoment-tragender, tunnelnder Teilchen für dielektrische Eigenschaften der Materialien. Die Vorhersagen des Standardtunnelmodells für die Änderung der dielektrischen Permittivität von Gläsern im Tieftemperaturbereich sind qualitativ gut, jedoch wurden auch bezüglich dieses Modells in den vergangenen Jahren Abweichungen festgestellt, die mithilfe erweiternder Theorien zu erklären versucht werden. Beispielsweise wurde eine Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Funktion des Glases  $\alpha$ -BaO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> bei etwa 5 mK gemessen [Str98]. Ein Modell, welches dies erklärt ist das Kernquadrupolmodell: Tragen die tunnelnden Teilchen ein Kernquadrupolmoment, so wechselwirken sie mit dem Magnetfeld. Auch auf die dielektrische Funktion haben Kernquadrupolmomente einen Einfluss.

Diese Arbeit widmet sich daher Messungen der dielektrischen Leitfähigkeit des Glases

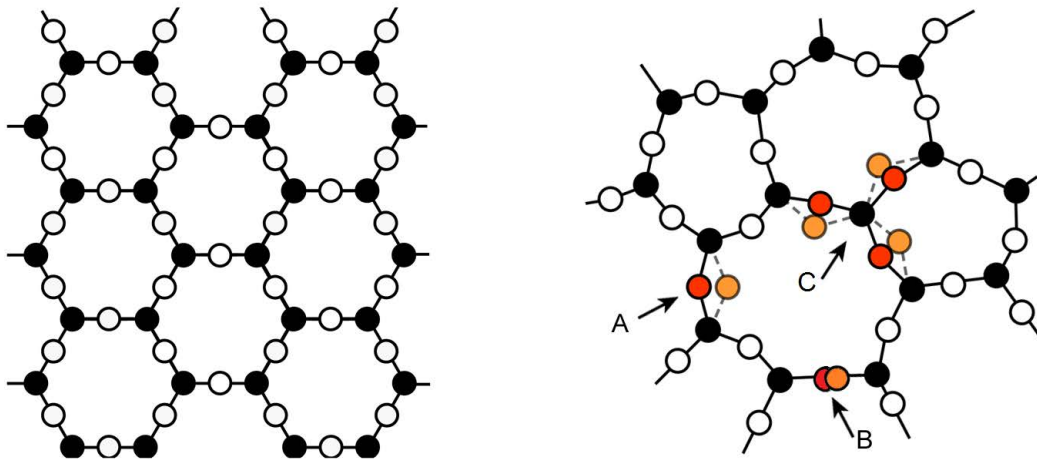


Abbildung 1.1: Zweidimensionale schematische Darstellung der Struktur in einem SiO-Glas mit Tunnelssystemen (rechts) im Vergleich zu einem SiO-Kristall (links) (nach [Hun74]).

N-KZFS11, welches sich durch einige Prozent Tantal mit großem Kernquadrupolmoment auszeichnet. Durch Wahl eines Glases mit großem Kernquadrupolmoment wird gehofft, den Einfluss dieser zu höheren Temperaturen als bei bisher vermessenen Gläsern hin verschieben zu können.

Dielektrische Messungen an dem Glas wurden bereits im kHz- [Luc11] und im GHz-Bereich [Wes15] durchgeführt. Die Änderung des dielektrischen Verlustes stimmte besonders im kHz-Bereich nicht mit den Erwartungen überein. Es ist daher interessant, die Lücke im MHz-Bereich zu schließen.

Kapitel 2 hat zur Aufgabe, den nötigen theoretischen Hintergrund der Arbeit zu vermitteln. In Kapitel 3 wird das Messprinzip und der Versuchsaufbau erklärt. Im Anschluss sollen in Kap. 4 die Ergebnisse präsentiert, diskutiert und in einen Zusammenhang mit den Ergebnissen anderer Arbeiten gesetzt werden. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und einem Ausblick für mögliche Arbeiten in der Zukunft.

## 2. theoretische Grundlagen

Da zur Auswertung der Tieftemperaturdaten das Standardtunnelmodell genutzt wird, soll es hier zuerst vorgestellt werden. Nach einer quantenmechanischen Einführung wird in Kapitel 2.2 der Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes auf die Tunnelsysteme beschrieben. In Kapitel 2.3 wird der Verlauf der dielektrischen Funktion aufgrund des Standardtunnelmodells zusammengefasst. Der Theorieteil schließt mit Kapitel 2.4, in welchem das Kernquadrupolmodell als Erweiterung des Standardtunnelmodells motiviert und vorgestellt wird.

### 2.1 Standardtunnelmodell

Das Standardtunnelmodell geht von einem Teilchen mit effektiver Masse  $m$  in einem Doppelmuldenpotential mit Abstand  $d$  der beiden harmonischen Teilpotentiale, Potentialbarriere  $V$  und Asymmetrieenergie  $\Delta$  aus. In Abbildung 2.1 ist ein derartiges Potential im Konfigurationsraum dargestellt. Es kann mathematisch über

$$V(x) = \begin{cases} \gamma(x + \frac{d}{2})^2 + \frac{\Delta}{2} & , x < 0 \\ \gamma(x - \frac{d}{2})^2 - \frac{\Delta}{2} & , x > 0 \end{cases} \quad (2.1)$$

ausgedrückt werden, wenn  $x = 0$  am lokalen Potentialmaximum gewählt wird. Dabei beschreibt  $\gamma$  die Steilheit der Potentialwände.

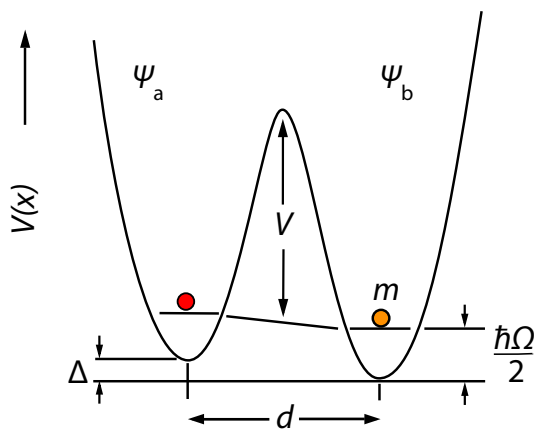


Abbildung 2.1: Schematische Zeichnung eines Doppelmuldenpotentials wie im Standardtunnelmodell verwendet, aus [Ens05]

Im Fall von Temperaturen unter einigen Kelvin ist die thermische Energie kleiner als die Energiedifferenz zwischen den angeregten Zuständen eines Teilpotentials.

Im Standardtunnelmodell werden daher nur die jeweiligen Grundzustände der einzelnen harmonischen Potentialtöpfe a und b mit normierten Grundzustandswellenfunktionen  $\Psi_a$  und  $\Psi_b$  mit jeweils der zugehörigen Grundzustandsenergie

$$E_a = \frac{\hbar\Omega}{2} + \frac{\Delta}{2} \quad (2.2)$$

$$E_b = \frac{\hbar\Omega}{2} - \frac{\Delta}{2} \quad (2.3)$$

betrachtet. Dabei ist die Eigenfrequenz  $\Omega$  nach der Theorie des harmonischen Oszillators

$$V(x) = \gamma x^2 = \frac{1}{2} m \Omega^2 \quad (2.4)$$

$$\Omega = \sqrt{\frac{2\gamma}{m}} \quad (2.5)$$

Mit dem Ansatz für die Gesamtwellenfunktion

$$\Psi = a\Psi_a + b\Psi_b \quad (2.6)$$

wird nach dem Ritzschen Variationsverfahren der kleinste Energieeigenwert  $E$  für die Schrödingergleichung  $\hat{H}\Psi = E\Psi$  mit Hamiltonoperator  $\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 + V(x)$  gefunden. Aus den Wellenfunktionen eines harmonischen Oszillators ergibt sich für  $\langle\Psi_a|\Psi_b\rangle = e^{-\lambda}$  und damit für die Überlappenergie

$$E_{ab} = -\frac{\hbar\Omega}{2} e^{-\lambda} = -\frac{\Delta_0(\lambda)}{2} \quad (2.7)$$

mit dem Tunnelparameter  $\lambda = \frac{\gamma d^2}{2\hbar\Omega}$ . Der Hamilton-Operator ergibt sich demnach wie folgt:

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix}. \quad (2.8)$$

Nach Diagonalisieren der Matrix erhält man die symmetrische und antisymmetrische Wellenfunktion des Grundzustands im Doppelmuldenpotential

$$\Psi_+ = \Psi_a \cos(\theta) + \Psi_b \sin(\theta) \quad (2.9)$$

$$\Psi_- = -\Psi_a \sin(\theta) + \Psi_b \cos(\theta) \quad (2.10)$$

mit

$$\tan(2\theta) = \frac{\Delta_0}{\Delta} \quad (2.11)$$

und den entsprechenden Energien und Energieaufspaltung  $E$ :

$$E_{\mp} = \frac{\hbar\Omega}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0(\lambda)^2} = \frac{\hbar\Omega}{2} \pm \frac{1}{2} E \quad (2.12)$$

Das Verhalten der Teilchen im Doppelmuldenpotential entspricht demnach dem eines Zweiniveausystems mit Energieaufspaltung  $E$ , wobei die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens in den Mulden a und b vom Verhältnis aus Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$  und Asymmetrieenergie  $\Delta$  abhängt.

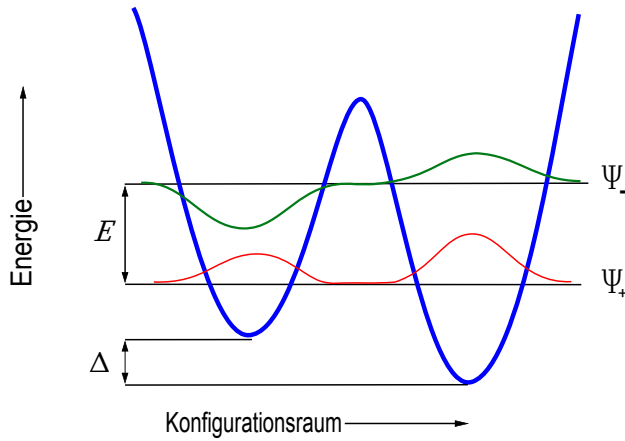


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der symmetrischen und antisymmetrischen Wellenfunktionen im Doppelmuldenpotential, aus [Luc11]

### Verteilung der Parameter in Gläsern

Es scheint plausibel, dass aufgrund der strukturellen Unordnung in Gläsern eine große Vielfalt von Potentialparametern auftreten können. Daher ist eine breite Verteilung dieser sinnvoll. Im Standardtunnelmodell wird für Gläser vereinfachend eine konstante und voneinander unabhängige Verteilung der Tunnelparameter  $\lambda$  und der Asymmetrieenergien  $\Delta$  angenommen.

$$P(\Delta, \lambda)d\Delta d\lambda = P_0 d\Delta d\lambda \quad (2.13)$$

Durch eine Variablentransformation lässt sich die Verteilung durch  $E(\Delta, \Delta_0)$  und  $\Delta_0(\lambda)$  ausdrücken, was für weitere Modellierungen günstiger ist, da die Energien direkt mit der Temperatur im Zusammenhang stehen:

$$P(E, \Delta_0)dEd\Delta_0 = P_0 \frac{E}{\Delta_0 \sqrt{E^2 - \Delta_0^2}} dEd\Delta_0 \quad (2.14)$$

Da bei  $\Delta_0 = 0$  und  $\Delta_0 = E$  Singularitäten in der Funktion auftauchen (siehe Abb. 2.3) und über die erstere nicht integriert werden kann, ist für die Integration eine untere Integrationsgrenze  $\Delta_{0,\min}$  nötig. Die Einführung von  $\Delta_{0,\min}$  ist auch anschaulich sinnvoll, da  $\lambda \xrightarrow{\Delta_0 \rightarrow 0} \infty$ , sodass die Wahrscheinlichkeit für Tunneln unendlich klein wird. Die Zustandsdichte im Glas ist demnach

$$D(E) = \int_{\Delta_{0,\min}^E} P(E, \Delta_0) d\Delta_0 = P_0 \ln\left(\frac{2E}{\Delta_{0,\min}}\right) \approx D_0 = \text{const.} \quad (2.15)$$

in nächster Näherung konstant. Für die spezifische Wärme von Gläsern ergibt sich mit dieser Zustandsdichte eine lineare Temperaturabhängigkeit, welche mit den experimentellen Beobachtungen [Zel71] etwa übereinstimmt.

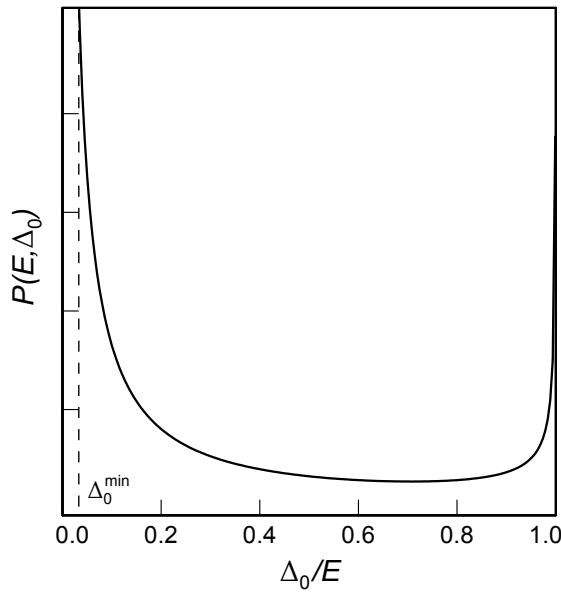


Abbildung 2.3: Parameterverteilung im Standardtunnelmodell

## 2.2 Wechselwirkung mit äußerem elektrischem Feld

In dieser Arbeit wird die Glasprobe einem elektrischen Wechselfeld ausgesetzt, um die dielektrischen Eigenschaften des Glases zu vermessen. Auch elektrisch neutrale Atome oder Moleküle wechselwirken mit dem elektrischen Feld, wenn sie ein Dipolmoment besitzen. In klassischer Anschauung würde ein freier Dipol sich parallel zum Feld ausrichten, um den energetisch niedrigsten Zustand zu erreichen. In isolierenden Materialien mit vorhandenen Dipolmomenten  $\vec{p}_i$  entsteht dadurch eine makroskopische Polarisation  $\delta\vec{P}$  proportional zur angelegten Feldstärke  $\vec{F}$  im Volumen  $V$ .

$$\delta\vec{P} = \frac{1}{V} \sum \vec{p}_i \propto \vec{F} \quad (2.16)$$

Die dielektrische Verschiebung  $\vec{D}$ , ergibt sich aus der Summe des äußeren Feldes und der Polarisation und ist damit ebenfalls proportional zum angelegten Feld.

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{F} + \vec{P} = \hat{\varepsilon} \varepsilon_0 \vec{F} \quad (2.17)$$

Im Gleichgewichtszustand ist die Größe  $\hat{\varepsilon}$  ein Tensor. Da die hier betrachteten Materialien isotrop sind, reduziert sich der Tensor zu einem Skalar, welcher jedoch temperaturabhängig ist. Er wird als dielektrische Permittivität oder dielektrische Funktion bezeichnet. Unter Einfluss eines Wechselfeldes entsteht zudem eine Phasenverschiebung zwischen angelegtem Feld und Polarisation, sodass die dielektrische Funktion komplexwertig und frequenzabhängig wird.

$$\varepsilon(\omega, T) = \frac{\hat{\varepsilon}}{1 - i\omega\tau} = \varepsilon'(\omega, T) + i\varepsilon''(\omega, T) \quad (2.18)$$



Nun zur Beschreibung des Einflusses des elektrischen Feldes auf einen Dipol im Doppelmuldenpotential bei tiefen Temperaturen:

Wir haben in 2.1 bereits gesehen, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens im Doppelmuldenpotential von  $\Delta_0$  und  $\Delta$  abhängt (siehe Gleichungen 2.9 und 2.11). Anschaulich ist der Einfluss des elektrischen Feldes auf das effektive Potential eines Dipols im Festkörper in Abbildung 2.4 dargestellt. Liegt die eine Position des

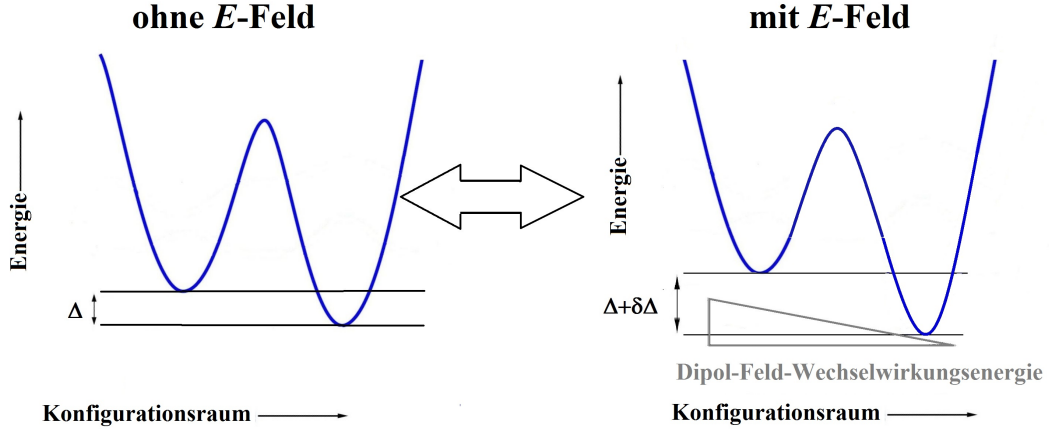


Abbildung 2.4: Anschauliche Darstellung der Änderung des effektiven Potentials eines Dipols bei äußerem elektrischem Feld

Dipols  $\vec{p}$  günstiger zur elektrischen Feldrichtung  $\vec{F}$ , so sinkt die Energie in dieser Position und damit verändert sich die Asymmetrieenergie  $\Delta$  um einen Wert  $\delta\Delta$ . Im Standardtunnelmodell wird angenommen, dass die Tunnelaufspaltung  $\Delta_0$  nicht stark durch das elektrische Feld verändert wird. Das heißt  $\delta\Delta_0 \ll \delta\Delta$ . Das Einschalten des elektrischen Feldes kann durch einen Störungsenergieoperator der Form

$$\hat{H}_s = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & -\delta\Delta_0 \\ \delta\Delta_0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & 0 \\ 0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

dargestellt werden, welcher zum Energieoperator  $\hat{H}_0$  aus Gleichung 2.8 addiert wird. Für kleine Felder, d.h. wenn gilt  $\vec{p}\vec{F} \ll k_B T$  kann man annehmen, dass sich die Asymmetrieenergie linear zur Feldstärke ändert:

$$\delta\Delta = 2\vec{p} \cdot \vec{F} \quad (2.20)$$

Umgeformt in die Basis des diagonalisierten Hamiltonoperators ergibt sich für die Änderung der Energieaufspaltung zwischen  $\Psi_+$  und  $\Psi_-$  unter Berücksichtigung der linearen Anregung demnach

$$\delta E = 2\vec{p} \cdot \vec{F} \frac{\Delta}{E}. \quad (2.21)$$

## Relaxationsprozesse

Legt man ein Wechselfeld  $\vec{F} = \vec{F}_0 e^{i\omega t}$  an das Glas an, verändert sich die Energiedifferenz der zwei Niveaus innerhalb der Tunnelsysteme und die Besetzungszahldifferenz aller Systeme weicht von der Gleichgewichtsbesetzung ab. Durch Wechselwirkung mit Phononen können die Systeme zurück in die Gleichgewichtsposition relaxieren.

Mit Hilfe von Fermis Goldener Regel für den Übergang zwischen Energieniveau 1 und 2 lässt sich diese Relaxationsrate eines solchen Einphononenprozesses, wie er bei tiefen Temperaturen relevant ist, berechnen.

$$W_{12} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_1 | \hat{H}_s | \Psi_2 \rangle|^2 D(E) f_{\text{BE}}(E) \delta(E_{\text{phon}} = E) \quad (2.22)$$

Dabei sind  $E_{\text{phon}}$  die Energie der Phononen,  $f_{\text{BE}}(E)$  die Bose-Einstein-Verteilung für die Verteilung der Phononen und  $D(E)$  die in Kap. 2.1 hergeleitete Zustandsdichte der Tunnelsysteme. Man findet für die Relaxationsrate eines Einphononenprozesses

$$\tau_{1\text{ph}}^{-1} = W_{12} + W_{21} \propto \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2 E^3 \coth\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \quad (2.23)$$

Die Systeme mit maximaler Relaxationsrate  $\tau_m^{-1}$  sind solche mit  $\frac{\Delta_0}{E} = 1$  und  $E = k_{\text{B}}T$ . Außerdem sinkt mit der Temperatur die Relaxationsrate, da weniger Phononen vorhanden sind.

## Resonante Prozesse

Außer der Relaxation über Phononen kann der Übergang zwischen den beiden Energieniveaus des Grundzustands auch direkt wechselwirkend mit dem elektrischen Feld über resonante Absorption und stimulierte Emission von Photonen erfolgen. Auch die Rate dieser Prozesse ist endlich, nimmt jedoch im Gegensatz zu der Relaxationsrate nicht mit der Temperatur ab. Resonante Prozesse sind daher hauptsächlich bei tiefen Temperaturen relevant, wenn die Anzahl der Phononen stark abnimmt und damit die Relaxation über Phononen sehr gering wird.

Die Herleitung des Einflusses resonanter und relaxativer Prozesse auf die dielektrische Funktion kann in Analogie zur akustischen Permittivität in [Jä72] nachgeschlagen werden. Hier sollen sie nur kurz zusammenfassend vorgestellt werden.

## 2.3 Verlauf der dielektrischen Funktion

Realteil und Imaginärteil der dielektrischen Funktion verlaufen nach dem Standardtunnelmodell wie in Abb. 2.5 zu sehen. Hierfür wurde in einer numerischen Simulation

über den Einfluss von relaxativen und resonanten Prozessen auf die nach Gl. 2.14 verteilten Tunnelsysteme summiert.

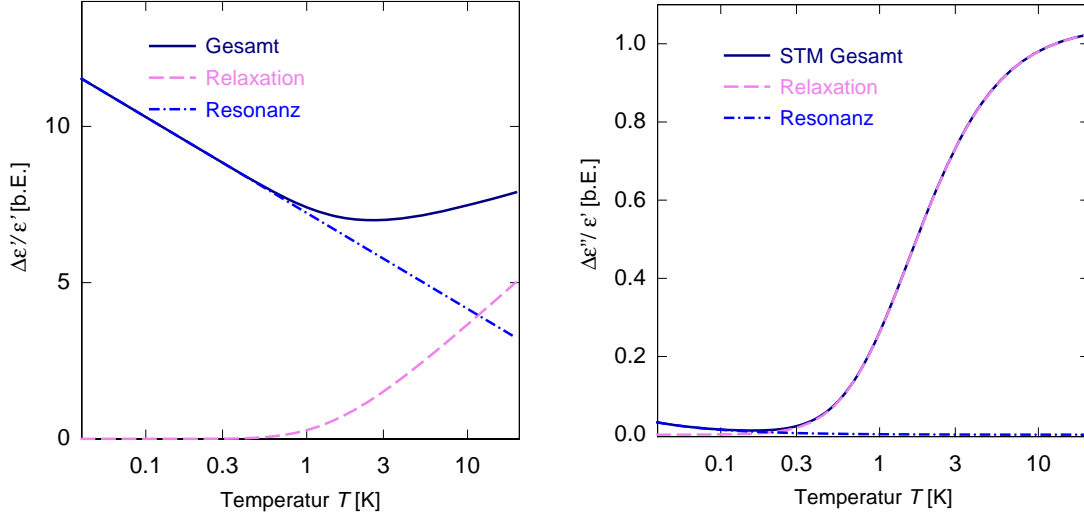


Abbildung 2.5: Simulation des Standardtunnelmodells für die Messfrequenz  $\omega = 25$  MHz und  $T_{\min} = 88$  mK. Die Integrationsgrenzen sind  $\Delta_{0,\min} = 2 \cdot 10^{-8} k_B T$  und  $E_{\max} = 200 k_B T$

Bei niedrigen Temperaturen  $T \ll 1$  K wird der Relaxationsbeitrag durch die zu kleinen Relaxationsraten (siehe Gl. 2.23) unbedeutend und die dielektrische Absorption ist allein durch den resonanten Beitrag (Gl. 2.25) gegeben. Bei höheren Temperaturen addieren sich Relaxationsbeitrag (Gl. 2.24) und Resonanter Beitrag :

$$\frac{\delta\epsilon'}{\epsilon'_{\text{rel}}} = \begin{cases} 0 & , T \ll T_{\min} \\ C_e \ln\left(\frac{T}{T_0}\right) & , T \gg T_{\min} \end{cases} \quad (2.24)$$

$$\frac{\delta\epsilon'}{\epsilon'_{\text{res}}} = \frac{-2}{3} C_e \ln\left(\frac{T}{T_0}\right), \quad (2.25)$$

sodass sich für das Steigungsverhältnis zwischen Hoch- und Tieftemperaturflanke nach dem Standardtunnelmodell  $-2 : 1$  ergibt. Das Minimum in der dielektrischen Funktion  $T_{\min}$  hängt direkt mit der Relaxationsrate (Gl. 2.23) zusammen, wobei Systeme mit  $E = k_B T$  den größten Einfluss haben. Die Temperatur an der es zu finden ist, skaliert daher mit  $\omega^{1/3}$ :

$$T_{\min} = \frac{(K\omega)^{1/3}}{k_B} \quad (2.26)$$

$K$  ist eine materialspezifische Konstante.

Der Imaginärteil wird in erster Linie durch die Relaxationsprozesse (Gl. 2.27) bestimmt, der bei den typischen Materialparametern oberhalb von 300 mK stark ansteigt und erst bei  $T > 3$  K langsam abflacht:

$$\tan \delta_{\text{rel}} \propto \begin{cases} \frac{AT^3}{\omega} & , \omega\tau_m^{-1} \gg 1 \\ C_e = \text{const.} & , \omega\tau_m^{-1} \ll 1 \end{cases} \quad (2.27)$$

Mit  $C_e = \frac{P_0 p^2 \cos^2(\phi)}{3\epsilon_0 \epsilon'}$ , wobei  $p^2 \cos^2(\phi)$  das effektive Dipolmoment nach Gl. 2.21 ist und  $\tau_m^{-1}$  die maximale Relaxationsrate.

Bei Temperaturen unterhalb von 300 mK sorgt der resonante Beitrag (Gl. 2.28)

$$\tan \delta_{\text{res}} = C_e \pi \omega \tanh\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \cdot g(\omega) \quad (2.28)$$

für ein erneutes leichtes Ansteigen des Verlustes zu tieferen Temperaturen hin, wobei  $g(\omega)$  als Lorentzfunktion die Zustandsdichte des Endzustands des resonanten Übergangs ausdrückt.

### Einfluss von Mehrphononenprozessen

Bei höheren Temperaturen können aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation auch Mehrphononenprozesse, insbesondere Ramanprozesse mit zwei beteiligten Phononen, einen Beitrag zur Relaxationsabsorption leisten und somit das Steigungsverhältnis verändern. In einem Ramanprozess wird das Teilchen in Niveau 1 auf ein Energieniveau angehoben, welches auch virtuell sein kann, und geht mithilfe eines weiteren Phonons über in Niveau 2. Aufgrund dadurch geöffneter Relaxationswege, wird die Relaxationsrate durch die Mehrphononenprozesse deutlich größer. Es ist gut vorstellbar, dass die Rate der Mehrphononenprozesse sehr stark temperaturabhängig ist und tatsächlich skaliert sie für die Ramanprozesse mit  $T^7$  [Dou80]:

$$\tau_{2\text{ph}} = R \cdot \tau_{1\text{ph}} \cdot T^7 \cdot \text{Polynom}\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad (2.29)$$

Über den Faktor  $R$  kann die Mehrphononenrate gegenüber der Einphononenrate (Gl. 2.23) stärker berücksichtigt werden, gleichbedeutend mit einer größeren Anzahl an stattfindenden Ramanprozessen. Die resonanten Prozesse bleiben unbeeinflusst. Der Einfluss von Mehrphononenprozessen auf die dielektrische Funktion ist in Abb. 2.6 dargestellt. Liegt das Minimum der dielektrischen Absorption wie hier im Bereich einiger Kelvin, wird auch die Lage des Minimums von den Mehrphononenprozessen beeinflusst. Im Imaginärteil entsteht ein deutliches Plateau durch einen längeren steileren Anstieg des Verlustes.

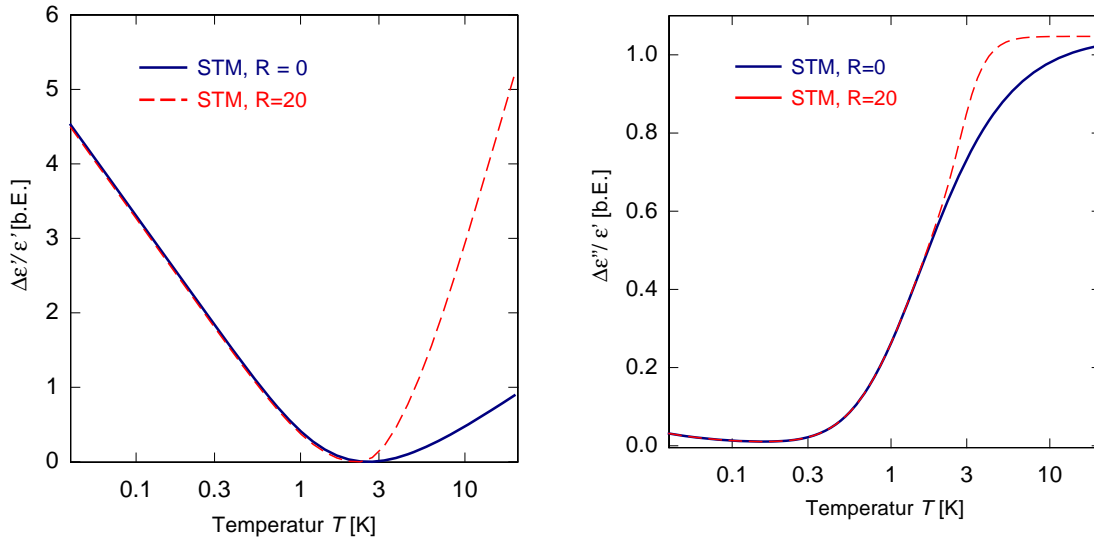


Abbildung 2.6: Vergleich des Standardtunnelmodells ohne und mit dem Einfluss von Ramanprozessen. Die Simulationsparameter entsprechen den zuvor gewählten, das Minimum im Realteil wurde zu Null verschoben

## 2.4 Einfluss von Kernquadrupolmomenten

### 2.4.1 Abweichungen vom Standardtunnelmodell

In den letzten Jahren häufen sich experimentelle Ergebnisse (z.B. [Ens89], [Str98], [Luc11]), welche sich von den Vorhersagen des Standardtunnelmodells deutlich unterscheiden. Ich will hier drei wichtige Merkmale vorstellen, um die verschiedenen Erweiterungen des Standardmodells zu motivieren.

#### Verändertes Steigungsverhältnis

Man findet beispielsweise bei nahezu allen bisher gemessenen Gläsern bezüglich der Dielektrizitätskonstante im Bereich des Minimums kein Steigungsverhältnis von  $-2 : 1$  wie vom Standardtunnelmodell vorhergesagt, sondern ein Verhältnis von circa  $-1 : 1$ . Abb. 2.7 dient hierfür als Beispiel. Da die Messung bei einer Frequenz von 1 kHz durchgeführt wurde und daher das Minimum unter 100 mK liegt, können Mehrphonenprozesse als zusätzliche Relaxationsmöglichkeit ausgeschlossen werden. Das hier betrachtete Glas N-KZFS11 ist bislang das Einzige, bei welchem ein Steigungsverhältnis von  $-2 : 1$  gefunden wurde [Dä10],[Luc11].

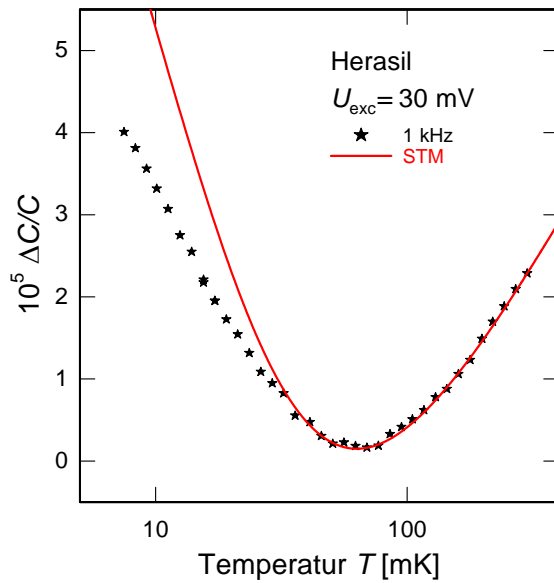


Abbildung 2.7: Dielektrizitätskonstante von Herasil (Standard-Quarz-Glas) gemessen von [Luc11] bei einer Frequenz von 1 kHz. Die numerische Berechnung des Standardtunnelmodells ist an das Minimum und die Hochtemperaturseite angepasst.

### Abflachen der dielektrischen Funktion bei tiefen Temperaturen

Bei einigen Gläsern wurde ein deutliches Abflachen der dielektrischen Funktion gemessen [Rog97], [Str98]. In Abb. 2.8 wird sie für das Glas  $BaO - Al_2O_2 - SiO_2$  (Albasi) unterhalb von 10mK sogar nahezu konstant.

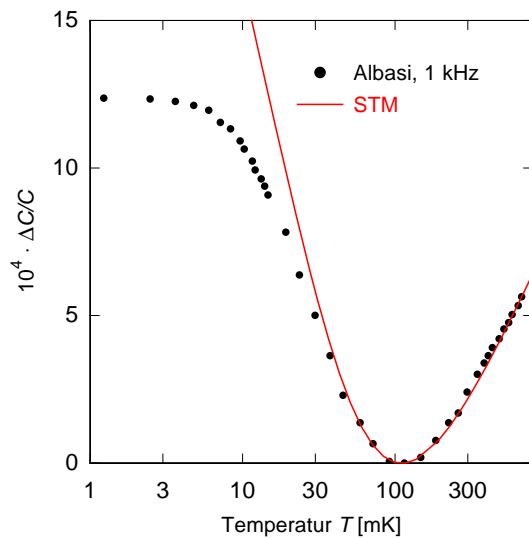


Abbildung 2.8: das dielektrische Verhalten von Albasi im mK-Bereich, gemessen von [Str98]

### Magnetfeldabhängigkeit der dielektrischen Konstante

In Abb. 2.9 wird die Abhängigkeit der dielektrischen Funktion von Albasi von der Änderung des Magnetfeldes aufgezeigt. Im oberen Teil des Bildes ist die Änderung

des B-Feldes um  $10 \mu\text{T}$  dargestellt, darunter die Dielektrizitätskonstante, welche dem Magnetfeld bei einer Temperatur von knapp  $2 \text{ mK}$  augenscheinlich folgt.

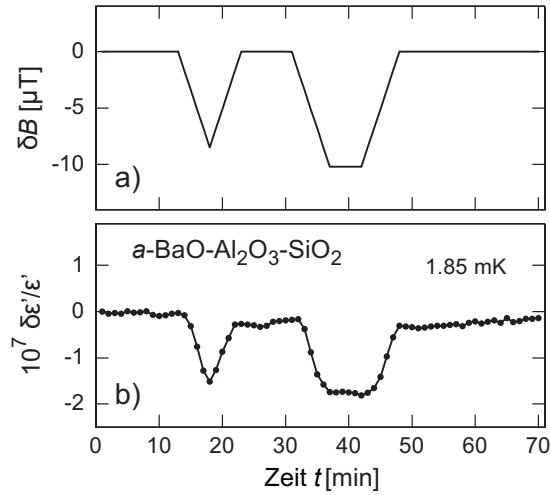


Abbildung 2.9: Abhängigkeit der Dielektrizitätskonstante von  $\text{BaO} - \text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$  von einem externen Magnetfeld, aus [Str98]

Das ist eine sehr interessante Erkenntnis, da nach den Annahmen des Standardtunnelmodells keine Magnetfeldabhängigkeit der Dielektrizitätskonstante auftreten sollte. Des Weiteren gibt sie ein Indiz dafür, in welche Richtung die Modellbildung erweitert werden muss. Weitere Experimente an deuteriertem und nicht-deuteriertem Glycerin lieferten die Erkenntnis, dass ein wesentlicher Faktor für die Magnetfeldabhängigkeit die Existenz von Kernquadrupolmomenten in der Probe sein muss [Nag04]. Auch das Abflachen der Dielektrizitätskonstante kann mithilfe des Modells tunnelnder Kernquadrupoltragender Teilchen verstanden werden [Bur06a]. Das BAS-Glas enthält durch Aluminium und Barium ebenfalls Kernquadrupolmomente.

### 2.4.2 Das Kernquadrupolmodell

Das Kernquadrupolmodell, entwickelt von [Wü02] und [Bur06a], [Bur06b], betrachtet Teilchen im Doppelmuldenpotential die einen Kernspin  $I \geq 1$  und damit ein elektrisches Quadrupolmoment

$$Q = \int (3(\vec{r} \cdot \vec{e})^2 - r^2) \rho(\vec{r}) d^3 r \quad (2.30)$$

und ein magnetisches Dipolmoment

$$\mu = \frac{g_\mu I}{\hbar} \quad (2.31)$$

besitzen. Das Quadrupolmoment koppelt mit dem elektrischen Feldgradienten  $\nabla \vec{F}$ , welcher abhängig von der Struktur der Umgebung ist, da beispielsweise Atome oder

Moleküle mit Dipolmoment in der Nachbarbarschaft das elektrische Feld verändern können. Daher ist es sehr wahrscheinlich, dass der Feldgradient in den zwei Mulden des Doppelmuldenpotentials unterschiedlich groß ist und auch in eine andere Richtung  $\vec{u}$  zeigt.

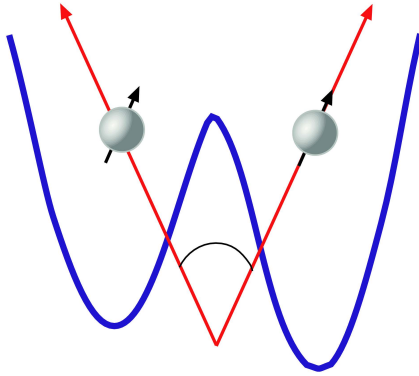


Abbildung 2.10: Kernquadrupolmodell nach [Wü02]. Die Richtung des elektrischen Feldgradienten  $\nabla \vec{F}$  ist in den Mulden verschieden, hier dargestellt durch die roten Pfeile, während der Kernspin  $\vec{I}$  gleich ausgerichtet bleibt (schwarze Pfeile)

Der Übergang zwischen symmetrischer und antisymmetrischer Wellenfunktion geht nicht nur mit einer Ortsänderung im Konfigurationsraum sondern auch mit der Änderung des Feldgradienten einher. Durch die Kopplung des Quadrupolmoments mit dem elektrischen Feldgradienten spalten sich die beiden Energiezustände des Teilchens im Potential in  $(2I+1)$  Unterniveaus auf [Wü02], sodass die effektive Tunnelaufspaltung kleiner wird:  $\Delta_{0,\text{eff}} < \Delta_0$  [Bur06b]. Wobei  $\Delta_0$  hierbei die Tunnelaufspaltung aus Kap. 2.1 ist. Dadurch entsteht eine Lücke in der Wahrscheinlichkeitsdichte der Energieaufspaltung der Doppelmuldenpotentiale, die von der Anzahl tunnelnder Atome und deren magnetischem Dipolmoment abhängt. Die Unterdrückung einiger Energiezustände führt zu einem weniger starken resonanten Beitrag zur dielektrischen Funktion, was wiederum ein Abflachen dieser bei niedrigen Temperaturen zufolge hat, wie in Abb.2.11 zu sehen.

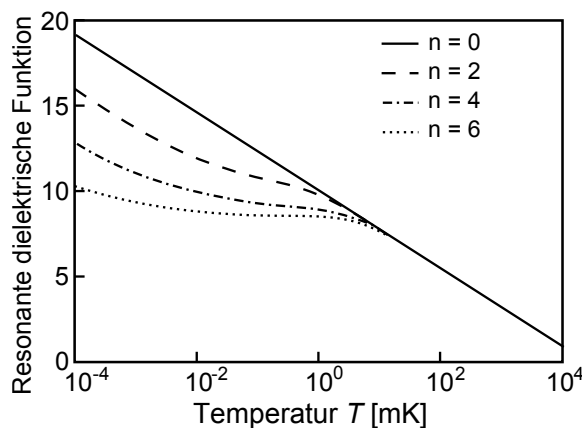


Abbildung 2.11: Abflachen der dielektrischen Funktion durch  $n$  tunnelnde Atome mit Kernquadrupolmoment und Kernspin  $I = 1$ , nach [Bur06b]

Die Magnetfeldabhängigkeit, die in Abb. 2.9 aufgezeigt wurde, lässt sich mithilfe des magnetischen Moments der tunnelnden Teilchen erklären: Dieses koppelt mit



---

dem externen Magnetfeld und durch Zeemanaufspaltung verändert sich die effektive Tunnelaufspaltung des Systems und damit die Wahrscheinlichkeitsdichte der Energiezustände und so auch die dielektrische Konstante. Für sehr große Magnetfelder  $B$  überwiegt die Zeemanaufspaltung die elektrische Aufspaltung und da das externe Magnetfeld in beiden Potentialmulden gleich ist, verhält sich das System wieder nach dem Standardtunnelmodell. Der Einfluss ausschließlich schwacher Magnetfelder wurde zum Beispiel bereits in [Nag04] gefunden. Das Kernquadrupolmodell stellt uns eine Theorie zur Verfügung, welche das Abflachen der dielektrischen Funktion und die Magnetfeldabhängigkeit dieser für Gläser mit Kernquadrupolmomenten tragenden Atomen erklären kann. Das in dieser Arbeit betrachtete Glas N-KZFS11 besitzt sehr große Kernquadrupolmomente, sodass nach dem Modell das Abflachen der dielektrischen Funktion bereits bei höheren Temperaturen einsetzen sollte, als bei Albasi (Abb. 2.8).



## 3. Experimenteller Aufbau

Das Ziel dieser Arbeit, die dielektrische Funktion des Glases N-KZFS11 zu vermessen, wird mithilfe eines Resonators realisiert. Dieser wurde von [Zei15] entwickelt und ist ein kompakter LC-Schwingkreis, dessen Kapazität sich durch die dielektrischen Proben im Kondensator verändert. Um möglichst tiefe Temperaturen bis zu ca. 10 mK zu erreichen, wurde der Aufbau in einem Helium-Verdünnungskryostaten betrieben.

### 3.1 Kryostat und Thermometrie

Die Theorie zur Erzeugung von Temperaturen im mK-Bereich im Verdünnungskryostat soll hier nicht ausführlich behandelt werden. In [Ens05] findet sich beispielsweise eine prägnante Zusammenfassung der Funktionsweise des Verdünnungskryostaten.

In dem hier verwendeten Kryostaten lassen sich in der Mischkammer Tiefsttemperaturen von ca. 8 mK erreichen. Der Versuchsaufbau befindet sich auf der Experimentierplattform und ist thermisch sehr gut an die Mischkammer des Kryostaten gekoppelt. Zur Temperaturmessung wird ein Kohlethermometer verwendet, welches mithilfe eines Fixpunktthermometers kalibriert wurde, sodass der Fehler nie mehr als 3% der angezeigten Temperatur beträgt. Da diese Unsicherheit auf der gesamten Temperaturskala existiert und uns nur relative Effekte interessieren, spielt der Fehler durch das Thermometer keine große Rolle.

### 3.2 Probe

Die in diesem Experiment untersuchte Probe ist das optische Multikomponentenglas N-KZFS11, hergestellt von der Schott AG<sup>1</sup>. Ihre Dicke beträgt 0,5 mm und der Ausdehnungskoeffizient zwischen  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $70\text{ }^{\circ}\text{C}$  liegt bei  $6,6 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{K}}$  [Sch14]. Auf die Probe ist eine wenige Nanometer dünne Goldschicht aufgebracht, die für einen besseren Kontakt der Probe an die Kondensatorplatten sorgt, sodass die Probe den Kondensator möglichst vollständig ausfüllt.

N-KZFS11 ist ein optisches Glas, basierend auf  $\text{SiO}_2$  und die Oxide  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$  und  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  beinhaltend. Das Tantaloxid macht einen Massenanteil von 25% aus und ist aufgrund des sehr großen Kernquadrupolmoments der Grund, dieses Glas

---

<sup>1</sup>Schott AG, Hattenbergstr. 10, 55122 Mainz, Deutschland.

zu untersuchen.

Die chemischen Komponenten des Glases samt Kernspin und Kernquadrupolmoment sind in Tab. 3.1 zusammengefasst. Im Vergleich zum Kernquadrupolmoment von Alu-

Isotop	$I$	$Q$ [barn]
$^{11}\text{B}$	$3/2$	+0,04
$^{16}\text{O}$	0	0
$^{23}\text{Na}$	$3/2$	+0,1
$^{29}\text{Si}$	$1/2$	0
$^{91}\text{Zr}$	$5/2$	-0,2
$^{181}\text{Ta}$	$7/2$	+3,3

Tabelle 3.1: Komponenten des Glases N-KZFS11 mit ihren Kernspins und Kernquadrupolmomenten, nach [Sto14]

minium ( $Q = 0,147$  barn), welches die Abweichungen der dielektrischen Funktion von Albasi vom Standardtunnelmodell erklären kann (Kap. 2.4.1), ist das Kernquadrupolmoment von Tantal etwa 22-mal größer. Damit wächst auch die Quadrupolaufspaltung  $b = Q|\frac{\partial F}{\partial x}|$  um etwa diesen Faktor, weswegen man eine Abweichung vom Standardtunnelmodell und ein Abflachen des resonanten Anteils bereits bei deutlich höheren Temperaturen als bei Albasi erwarten würde. Die dielektrischen Tieftemperatureigenschaften des Glases wurden allerdings bereits bei Frequenzen im kHz-[Luc14] und GHz-Bereich [Wes15] vermessen ohne dass ein derart starkes Abflachen des Realteils als Funktion der Temperatur wie im Fall von Albasi beobachtet wurde.

Die Probendicke beträgt 0,5 mm und der Ausdehnungskoeffizient zwischen  $-30\text{ °C}$  und  $70\text{ °C}$  liegt bei  $6,6 \cdot 10^{-6} \frac{1}{\text{K}}$  [Sch14]. Auf die Probe ist eine wenige Nanometer dünne Goldschicht aufgebracht, die für einen besseren Kontakt der Probe an die Kondensatorplatten sorgt, sodass die Probe den Kondensator möglichst vollständig ausfüllt.

### 3.3 Aufbau des Resonators

Der in dieser Arbeit verwendete Resonator besteht aus zwei parallel geschalteten, gestapelten Plattenkondensatoren, welche mit einer Spule einen LC-Schwingkreis mit einer Resonanzfrequenz von einigen MHz bilden. Der schematische Aufbau und das Schaltbild sind in Abb. 3.1 dargestellt.

Die Spule mit einer Induktivität von  $L = (256 \pm 25)$  nH bei zwölf Wicklungen verbindet die äußeren mit der mittleren Platte. Sie besteht ebenso wie der Kurzschlussdraht zwischen oberer und unterer Kondensatorplatte aus versilbertem Kup-

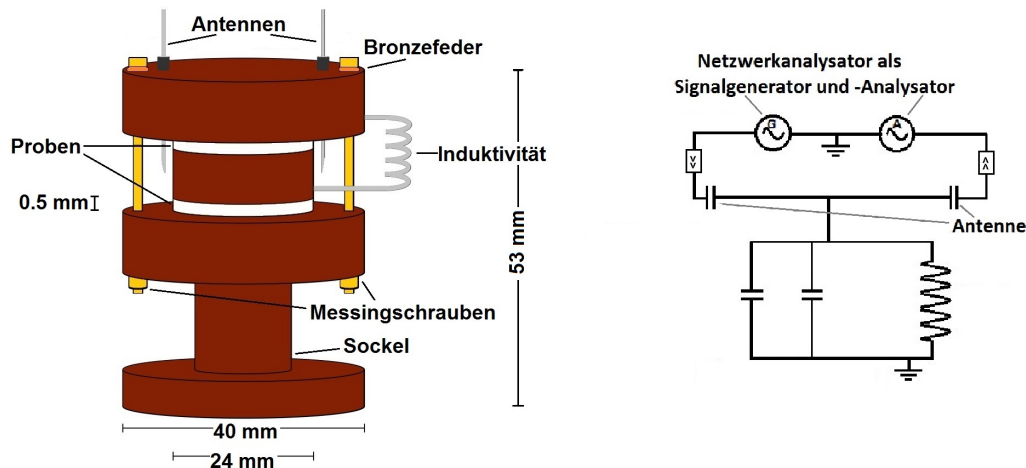


Abbildung 3.1: schematischer Aufbau (links) und Schaltkreis des Resonators (rechts)

fer und hat einen Durchmesser von 1,5 mm, sodass ihr Innenwiderstand möglichst klein ist. Sockel und Kondensatorplatten bestehen aus sauerstofffreiem und getempertem Kupfer. Die Probe ist als Dielektrikum zwischen die Kondensatorplatten eingesetzt. Die Nutzung von Plattenkondensatoren führt zu einem sehr homogenen elektrischen Feld durch die Probe. Die äußeren Platten sind über Messingschrauben und einen versilberten Kupferdraht kurzgeschlossen und geerdet. Dafür und für die thermische Ankopplung sorgt der Sockel aus Kupfer, welcher an die Experimentierplattform geschraubt ist. Über die Eingangsantenne wird der Resonator schwach kapazitiv mit dem Anregungssignal zum Schwingen angeregt. Eine weitere Antenne misst die Transmission des Signals durch den Schwingkreis. Der Abstand der Platten ist abhängig von der Dicke der Probe. Damit der Plattenabstand bei thermischer Kontraktion und Expansion der Probe folgen kann, sind die Messingschrauben mit Bronzefedern versehen. Sie helfen, einen guten thermischen und elektrischen Kontakt zwischen Aufbau und Probe herzustellen, ohne sie zu stark zusammenzudrücken. Die Kapazität eines Plattenkondensators ist proportional zur Fläche der Platten  $A = (\pi \cdot 12 \text{ mm})^2$  sowie zum Dielektrikum  $\varepsilon'$  und antiproportional zum Abstand zwischen den Platten  $d$ :

$$C = \varepsilon_0 \varepsilon' \frac{A}{d} \quad (3.1)$$

In einer Parallelschaltung addieren sich die Einzelkapazitäten zu einer Gesamtkapazität. Die Dicke der Probe beträgt 0,5 mm. Sie bestimmen den Plattenabstand  $d$ . Unter der Annahme, dass der Einfluss thermischer Ausdehnung der Probe vernachlässigbar klein ist, misst man mit diesem Aufbau die dielektrischen Eigenschaften der Probe. Da sich diese mit der Temperatur verändern, verändert sich die Kapazität entsprechend und damit das Resonanzverhalten des Schwingkreises. Bei dem Glas N-KZFS11 ist der thermische Ausdehnungskoeffizient (siehe Kap. 3.2) so klein, dass

man ihn im Tieftemperaturbereich vernachlässigen kann. Als obere Abschätzung für die Änderung der Dicke  $d$  kann ein konstanter Ausdehnungskoeffizient angenommen werden. Damit ergibt sich für den Hochtemperaturbereich bei einer Temperaturdifferenz von 300 K die relative Änderung der Kapazität, verursacht durch thermische Ausdehnung  $\frac{\Delta C}{C} = \frac{\Delta d}{d} \leq 1.9 \cdot 10^{-3}$ .

### 3.4 Signalweg

Für die Messungen der Resonanzkurve ist ein sehr kleines Eingangssignal erforderlich um den Wärmeeintrag in den Aufbau zu minimieren und die Probe nicht nichtlinear anzuregen (siehe Gl. 2.20). Deswegen wird das Signal an verschiedenen Stellen im Signalweg gedämpft oder verstärkt. Das soll im Folgenden näher beschrieben werden. In Abb. 3.2 ist der Signalweg für eine bessere Übersicht skizziert.

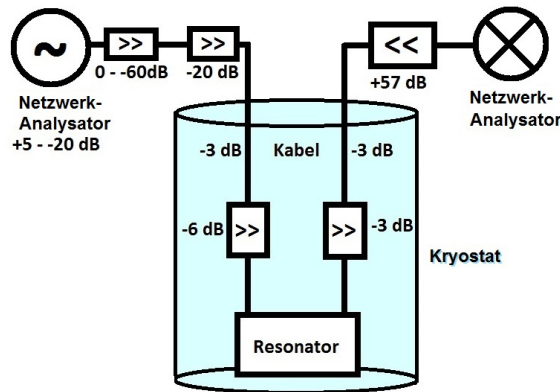


Abbildung 3.2: Schematische Übersicht des Signalgangs mit Dämpfungs und Verstärkungsgliedern

Das Signal zur Anregung des Schwingkreises wird vom Netzwerkanalysator HP8752C<sup>2</sup> erzeugt. Die Sendeleistung des Signalgenerators des Netzwerkanalysators beträgt zwischen  $-20$  und  $+5$  dBm. Ein weiteres regelbares Dämpfungsglied<sup>3</sup> befindet sich hinter dem Ausgang des Netzwerkanalysators und kann eine weitere Dämpfung von 0 bis 60 dB erreichen. Zur Vermeidung des Wärmeeintrags in den Kryostaten ist an dessen Eingang ein festes Dämpfungsglied mit 20 dB Abschwächung eingebaut. Die Koaxialkabel tragen zu einer Dämpfung von 3 dB sowohl auf der Eingangs- als auch der Ausgangsseite des Experiments bei. Die Dämpfungsglieder<sup>4</sup> direkt am Resonator sollen stehende Wellen im Kabel unterdrücken. Das kapazitiv ausgekoppelte Messsignal wird nach Verlassen des Kryostaten um 57 dB verstärkt<sup>5</sup>. Bei den Messungen

<sup>2</sup>HP 8752C, Hewlett-Packard Company, 3000 Hanover Street, Palo Alto, CA 94304-1185 USA.

<sup>3</sup>Step Attenuator AE116-60-01-0N, Weinschel, 5305 Spectrum Drive Frederick, MD 21703 USA.

<sup>4</sup>alle festen Dämpfungsglieder sind vom Typ: 18AH, Inmet, 300 Dino Drive, Ann Arbor, MI 48103 USA.

<sup>5</sup>MiTEQ M/N-AU-4A-0150, L-3 Narda-MITEQ, 435 Moreland Road, Hauppauge, NY 11788 USA.

der dielektrischen Funktion von N-KZFS11 wurde ein Eingangssignal von -64 dBm für Temperaturen über und -79 dBm unterhalb von 20,4 mK verwendet. Das Heizen oder nichtlineare Treiben der Probe durch eine zu hohe Anregungsspannung wird bei niedrigen Temperaturen besonders relevant. Da der Verlust zu höheren Temperaturen aufgrund thermischer Prozesse zunimmt, nimmt das Signal-Rausch-Verhältnis zu höheren Temperaturen hin ab, was die dort verwendete höhere Eingangsspannung begründet.

### 3.5 Messung der dielektrischen Funktion

Zur Messung der dielektrischen Funktion werden zunächst Resonanzkurven aufgenommen, indem der Netzwerkanalysator die Frequenzen zwischen einer Start- und Stopfrequenz durchfährt und den Resonator bei jeder dieser Frequenzen anregt. Die Transmission des Signals wird jeweils gemessen und durch Kombination aller in einem Durchgang gemessenen Frequenzen wird die Resonanzkurve erstellt. Die Resonanzen wurden auf ihre Güte und ihre Resonanzfrequenz hin untersucht und aus diesen wurde die Änderung der Kapazität  $\frac{\Delta C}{C}$  und der Verlustwinkel  $\tan \delta$  berechnet.

#### 3.5.1 Erfassung der Messdaten

Die Erfassung der Resonanzkurven sowie die Temperaturkontrolle wurde mithilfe eines LabVIEW-Programms<sup>6</sup> gesteuert. Die Verbindung zwischen Netzwerkanalysator und Computer erfolgt via GPIB, die Temperaturkontrolle läuft über einen weiteren Rechner, welcher den Kryostaten samt Heizer kontrolliert.

Start- und Stopfrequenz wurden jeweils so gewählt, dass die Resonanzfrequenz möglichst mittig und links und rechts davon jeweils etwa 0,5 MHz gescannter Frequenzbereich liegt. In diesem Bereich von etwa 1 MHz wurden 1601 Datenpunkte mit jeweils einer Bandbreite von 30 Hz gemessen.

Aus der Theorie des Schwingkreises erwartet man eine Resonanzkurve in Form einer Lorentzfunktion, zuzüglich eines vorhandenen Untergrunds, welcher linear oder quadratisch angenähert wird. Daher wurden an die Messdaten Lorentzfunktionen der Form

$$A(f) = \frac{A_0}{\sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 + \frac{f_0^2 f^2}{Q^2}}} + \text{Untergrund} \quad (3.2)$$

<sup>6</sup>LabVIEW 8.5, National Instruments Corporation, 11500 N MoPac Expwy, Austin, TX 78759-3504 USA.

angepasst. Dabei steht  $f_0$  für die Resonanzfrequenz,  $A_0$  für die Maximalamplitude und  $Q$  für die Güte, welche die Breite der Funktion im Bezug zur Maximalamplitude charakterisiert.

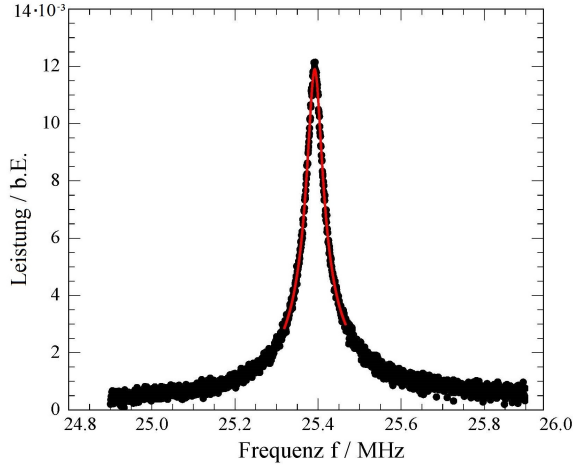


Abbildung 3.3: Messkurve der Resonanz bei 40 mK mit Lorentzfit (rot), aufgenommen mit  $-64$  dBm Eingangsspannung.

Zunächst wurde eine numerische Anpassung an die gesamten Daten mit quadratischem Untergrund  $c_0 + m_0 f + n_0 f^2$  erstellt und mit den daraus bestimmten Werten nochmals eine Anpassung mit sowohl linearem als auch quadratischem Untergrund an das Frequenzfenster  $f_0 \pm 2(f_0/\sqrt{Q})$  berechnet, da teilweise ein systematischer Einfluss des Untergrunds erkannt wurde. Durch Wahl der geeigneten Untergrundform nach Vergleich beider, kann der systematische Einfluss der Anpassung auf die Resonanzfrequenz und die Güte minimiert werden.

### 3.5.2 Umrechnung in die Messgrößen

Die gesuchten Größen sind die Änderung der Kapazität  $\frac{\Delta C}{C}$  und der Verlust  $\tan \delta$  welcher sich durch das Dielektrikum ergibt. Hier soll erläutert werden, wie diese mithilfe der gemessenen Güte und Resonanzfrequenz errechnet werden können.

Die Kapazität eines Plattenkondensators ist proportional zur Fläche der Platten  $A$  sowie zum Dielektrikum  $\varepsilon'$  und antiproportional zum Abstand zwischen den Platten  $d$ , wie aus Gl. 3.1 bekannt. Die Resonanzfrequenz des idealen Schwingkreis beträgt

$$f = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}. \quad (3.3)$$

Damit lässt sich (mit  $L = (256 \pm 25) \text{ nH} = \text{const.}$ ) die relative Änderung der Kapazität zu

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{f_0^2}{f_0^{*2}} - 1 \quad (3.4)$$



berechnen. Als Referenzfrequenz  $f_0^*$  wird die größte der gemessenen Resonanzfrequenzen verwendet. Der Verlustwinkel entspricht der reziproken Güte:

$$\tan(\delta)_0 = \frac{1}{Q}. \quad (3.5)$$

Durch den Innenwiderstand der Spule besitzt der Aufbau einen intrinsischen Verlust  $\tan(\delta)_{\text{int}} = 7,75 \cdot 10^{-4}$  [Zei15]. Dieser Wert muss von den gemessenen Verlustfaktoren subtrahiert werden. Nach Abziehen dessen gilt auch

$$\tan(\delta) = \tan(\delta)_0 - \tan(\delta)_{\text{int}} = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'}. \quad (3.6)$$

Soll aus der Kapazitätsänderung der Realteil der dielektrischen Funktion berechnet werden, so muss man berücksichtigen, dass im Experiment außer der Kapazität des Plattenkondensators noch Parasitärkapazitäten z.B. in den Kabeln und an Grenzschichten auftreten, die nicht vom Dielektrikum beeinflusst werden. Die gesamte Parasitärkapazität wurde von [Zei15] auf  $C_{\text{par}} \approx 3$  pF bestimmt. Damit ist für die Umrechnung von der Kapazitätsänderung zur relativen Änderung der dielektrischen Permeabilität ein Faktor notwendig, der die Werte um die Parasitärkapazität korrigiert.

$$\frac{\Delta\varepsilon'}{\varepsilon'} = \frac{\Delta C}{C - C_{\text{par}}} = \frac{\Delta C}{C} \frac{1}{1 - \frac{C_{\text{par}}}{C}} \quad (3.7)$$

Dabei ist  $C$  die Referenzkapazität am Bezugspunkt des Graphen, welche sich über Gl. 3.3 berechnen lässt. Man kann jedoch von  $\varepsilon'/\varepsilon' \approx \Delta C/C$  ausgehen, da die Parasitärkapazität  $C_{\text{par}}$  sehr klein gegenüber der Referenzkapazität  $C$  ist. Der genaue Korrekturfaktor wird in Kap. 4.4.1 berechnet, wenn die Referenzkapazität bekannt ist.



## 4. Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die gewonnenen Messdaten präsentiert und ausgewertet. Im Anschluss folgt ein Vergleich aller mit dem in Kapitel 3.3 beschriebenen Aufbau gemessenen Gläser und mit den Daten von N-KZFS11 bei anderen Frequenzen.

### 4.1 Dielektrische Eigenschaften zwischen 20 mK und 300 K

Die dielektrischen Messdaten dieser Arbeit sollen nun kurz vorgestellt werden. Die Daten oberhalb von 5 K wurden beim Aufwärmen des Kryostaten ohne Temperaturstabilisierung gemessen, die Temperaturen der Messpunkte unterhalb von 5 K wurden kontrolliert angefahren. Wie in Abb. 4.1 zu sehen, steigen sowohl die di-

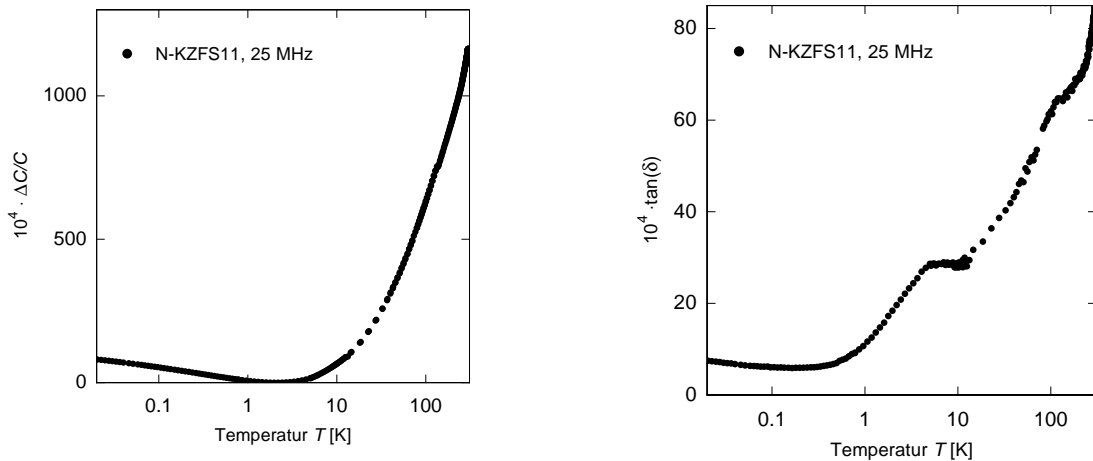


Abbildung 4.1: Realteil und Imaginärteil der dielektrischen Permittivität von N-KZFS11 bei 25 MHz zwischen 20 mK und 300 K

elektrische Permittivität als auch der Verlust zu höheren Temperaturen deutlich an. Während der Realteil stetig ansteigt, finden sich zwei Sattelpunkte im Verlust: Ein ausgeprägter bei 10 K und einer leicht oberhalb von 100 K. Der Anstieg beider Messgrößen mit der Temperatur zeigt, dass mit steigender Temperatur zunehmend mehr Relaxationsmöglichkeiten entstehen. Bis zu ca. 10 K nimmt die Anzahl der Mehrphononenprozesse zu und die ersten thermisch aktivierten Prozesse werden möglich. Das Plateau im Verlust bei 10 K wird vom Standardtunnelmodell mit Mehrphononenprozessen vorhergesagt, wie in Abb. 4.5 zu sehen. In diesem Temperaturbereich ist die maximale Anzahl der Systeme, welche über Mehrphononenprozesse relaxie-

ren, erreicht. Der erneute Anstieg des Verlustes ab etwa 13 K hängt mit den nun dominierenden thermisch aktivierten Prozessen zusammen, da mehr Systeme dem Feld folgen und daher die Energie des elektrischen Feldes in Wärme umgewandelt wird. Im Folgenden soll der Bereich bis 10 K, in welchem thermische Aktivierung noch keinen Einfluss hat, genauer analysiert werden.

## 4.2 Thermalisierung

Die Thermalisierungszeit kann durch Anwendung von Temperaturstufen und Auftragung der dielektrischen Funktion über der Zeit abgeschätzt werden. Oberhalb von 283 mK wurde jeweils eine halbe Stunde zur Probenthermalisierung gewartet, die Probe thermalisiert jedoch auch noch unterhalb von 283 mK annähernd sofort, wie in Abb. 4.2 links zu sehen. Daher kann davon ausgegangen werden, dass die Daten bei höheren Temperaturen thermalisiert sind. Bei niedrigeren Temperaturen wurden direkt nach Anfahren der nächsten Temperaturstufe Punkte aufgenommen, um die Entwicklung der Thermalisierung beobachten zu können, die zu tieferen Temperaturen zunehmend mehr Zeit in Anspruch nimmt. Die Dielektrizitätskonstante nähert sich während des Thermalisierungsvorgangs asymptotisch ihrem Wert im thermischen Gleichgewicht an. In Abb. 4.2 rechts ist die Thermalisierungskurve der Probe

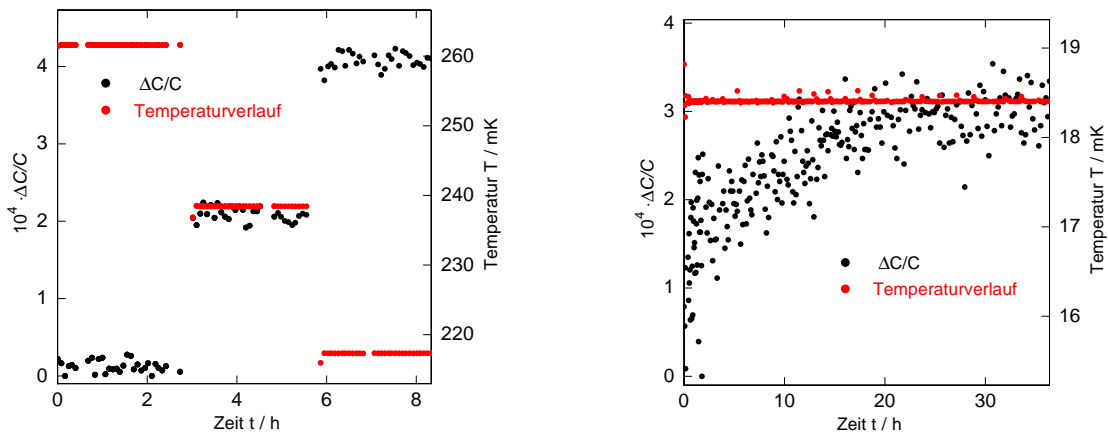


Abbildung 4.2: Thermalisierungskurven der Probe zwischen 260 mK und 217 mK (links) und bei 18,6 mK (links)

beispielhaft bei einer Temperatur von 18,4 mK dargestellt. Bei der niedrigsten erreichten Temperatur von 10 mK benötigt die Probe über 50 Stunden, um die neue Temperatur anzunehmen. Im Vergleich zu anderen Gläsern wie beispielsweise BK7 mit ca. 2-2,5 Stunden Thermalisierungszeit bei 10 mK [Hom15], thermalisiert das Glas sehr langsam. Ein Einfluss der Kernquadrupole auf die Thermalisierungszeit ist

denkbar, da bei dem Holmiumglas HY-1 ebenfalls lange Thermalisierungszeiten von etwa 14 Stunden gemessen wurden [Zei15].

Jeder einzelne Punkt innerhalb der Thermalisierungskurve ist Mittelwert von 10 Resonanzfrequenzen. Für den in Kapitel 4.4 dargestellten Graphen der Änderung der dielektrischen Funktion wurden jeweils die letzten 10 Punkte der Thermalisierungskurven nochmals gemittelt.

### 4.3 Anregungsleistung

Die Anregungsleistung darf nicht zu hoch sein, um ein nichtlineares Treiben der Probe auszuschließen und um den Wärmeeintrag in das Glas klein zu halten. Da dies in einem breiten Bereich kleiner Anregungsspannungen erfüllt sein sollte, erwartet man bei Messung der dielektrischen Funktion des Resonators bei gleichbleibender Temperatur und variierender Anregung einen plateauartigen Bereich, in welchem sich die dielektrische Funktion kaum bis gar nicht mit der Anregung ändert. In diesem Bereich beeinflusst die Leistung die Messkurve kaum und so kann in diesem Bereich gemessen werden. Diese Messung wurde für N-KZFS11 bei 20,4 mK durchgeführt.

In Abb. 4.3 sind die Ergebnisse der Messung dargestellt. Die großen Fehlerbal-

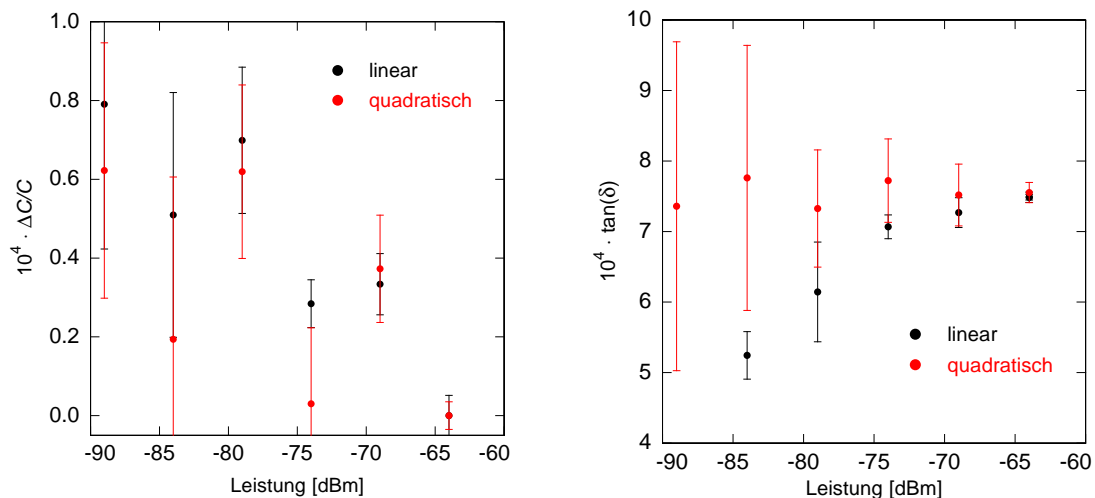


Abbildung 4.3: Änderung der relativen Kapazität und des Verlustwinkels von N-KZFS11 bei 20,4 mK bezüglich der Sendeleistung. Die Resonanzkurven wurden mit Lorentzkurven mit sowohl quadratischem als auch linearem Untergrund angepasst

ken der Punkte bei niedrigen Eingangsleistungen sind dem zunehmend schlechteren Signal-Rausch-Verhältnis geschuldet. Bei  $-79$  dBm liegt das Verhältnis etwa bei 10:1, weswegen diese Eingangsleistung als tiefst mögliche für weitere Messungen bei tieferen Temperaturen verwendet wurde. Leider ist im Realteil nur schwer ein Plateau

zu erkennen, da auch der Untergrund der angepassten Lorentzfunktion eine Rolle spielt.

Aus der Leistungsmessung wird deutlich, dass eine Verringerung der Messleistung eine Änderung des Realteils im Prozentbereich zu größeren Werten hin verursacht. Möglicherweise wurde die Probe zuvor nichtlinear angeregt. Eine Abschätzung der Feldstärken  $F$  in der Probe bei beiden Leistungen  $P_{\text{in}}$  ergibt mit der Güte  $Q = \tan(\delta)^{-1} \approx 1000$ , der dielektrischen Konstante  $\varepsilon \approx 6$ , der Messfrequenz  $\omega = 25$  MHz und dem Volumen der Probe  $V$  etwa:

$$F = \sqrt{\frac{2P_{\text{in}}Q}{V\varepsilon_0\varepsilon\omega}} \approx \begin{cases} 50 \frac{\text{V}}{\text{m}} & \text{bei } -64 \text{ dBm} \approx 400 \text{ pW} \\ 10 \frac{\text{V}}{\text{m}} & \text{bei } -79 \text{ dBm} \approx 13 \text{ pW} \end{cases} \quad (4.1)$$

Eine Verschiebung aufgrund eines Heizens der Probe kann nicht gänzlich ausgeschlossen werden, ist jedoch unwahrscheinlich: Schätzt man die Temperaturdifferenz  $\Delta T$  zwischen geheizter und entgegengesetzter Seite der Probe durch eine dilatometrische Rechnung unter Verwendung der thermischen Leitfähigkeit von BK7 [Hal12] bei 20 mK ( $\lambda_{\text{BK7}}$ ) ab, so findet man, dass sie bei

$$\Delta T = \frac{P_{\text{in}}d}{A\lambda_{\text{BK7}}} \approx \begin{cases} 0,02 \text{ mK} & \text{bei } -64 \text{ dBm} \approx 400 \text{ pW} \\ 7 \cdot 10^{-4} \text{ mK} & \text{bei } -79 \text{ dBm} \approx 13 \text{ pW} \end{cases} \quad (4.2)$$

liegt. Die Fläche der Probe  $A$  und die Dicke der Probe  $d$  folgen aus Kap. 3.1. Die Temperaturdifferenz zwischen den Probenseiten beträgt selbst bei einem Wärmestrom durch die eingetragene Leistung  $P_{\text{in}}$  von -64 dBm nur etwa ein Promille der angefahrenen Temperatur und somit müsste der Effekt um etwa einen Faktor 10 kleiner ausfallen, als der gemessene Sprung. In der Rechnung nicht enthalten sind jedoch Kapitawiderstände an den Materialübergängen, welche den thermischen Kontakt zur Experimentierplattform verschlechtern und damit zu einem Heizen der Probe beitragen könnten.

Interessanterweise bildet sich im Imaginärteil ein Plateau aus, welches sich bei quadratischem Untergrund über sämtliche Leistungen erstreckt und für linearen Untergrund ab  $-79$  dBm zu tieferen Leistungen abbricht. Bei einer Änderung der Leistung ist es daher sinnvoll, die Daten mit quadratischem Untergrund anzupassen, sodass dies im Imaginärteil keinen Einfluss hat, da der Effekt offensichtlich durch die Anpassung der Lorentzfunktion entsteht und nicht probenintrinsic ist.

Da oberhalb von 20,4 mK mit -64 dBm gemessen wurde und bei dieser Leistung kein signifikanter Einfluss der Untergrundform erkennbar ist, wurde hier ein linearer Untergrund angenommen, da bei diesem weniger Freiheitsgrade in der Anpassung der Lorentzkurve vorhanden sind.

## 4.4 Dielektrische Eigenschaften bei tiefen Temperaturen

Die Änderung der Kapazität  $\frac{\Delta C}{C}$  und der Verlustwinkel  $\tan(\delta)$  zwischen 10 mK und 10 K sind in Abb. 4.4 dargestellt. Die Daten der relativen Kapazitätsänderung wur-

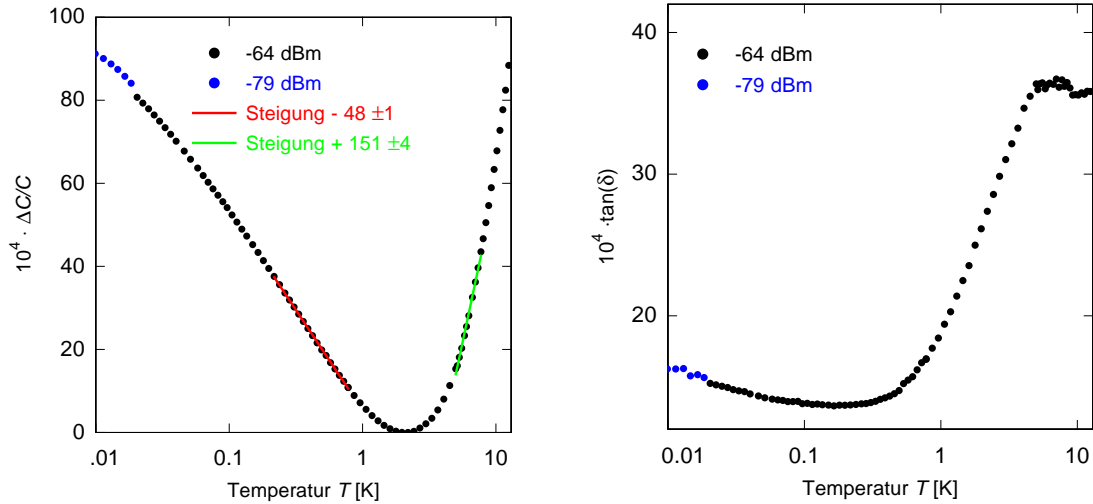


Abbildung 4.4: Messdaten der relativen Änderung der Kapazität und des Verlustwinkels von N-KZFS11 im Bereich von 10mK bis 10K

den bezüglich des Minimums der Messdaten aufgetragen, welches sich bei  $T_{\min} = 2,18$  K befindet. Das Steigungsverhältnis, erhalten durch die linearen Anpassungen in Abb. 4.4, beträgt  $-1 : 3,14$  und weicht damit von dem theoretischen Verhältnis  $-2 : 1$  (siehe Kap. 2.3) deutlich ab. Da die Temperatur des Minimums bereits über 2 K liegt und im Relaxationsanteil keine abrupte Steigungsänderung das Einsetzen der Mehrphononenprozesse bei höheren Temperaturen anzeigt, ist dies ein Indiz dafür, dass vorhandene Mehrphononenprozesse die Relaxationsrate bis in den Bereich des Minimums hinein alterieren und damit auch die Lage des Minimums beeinflussen.

Bei Temperaturen unterhalb des Minimums steigt der resonante Beitrag bis etwa 100 mK linear an und flacht bei tieferen Temperaturen zunehmend ab, geht jedoch nicht wie die dielektrische Funktion von Albasi in Sättigung (siehe Kap. 2.4.1).

Der in den Messdaten auftretende Sprung bei 20,4 mK ist der Änderung der Sendeleistung von  $-64$  dBm zu  $-79$  dBm geschuldet. Wegen eines technischen Defektes war es leider nicht mehr möglich, soweit Messpunkte mit der niedrigeren Sendeleistung aufzunehmen, bis die Kurven beider Sendeleistungen sich überlagern. Dennoch lässt sich aus dem Sprung lernen, dass die Kurve für kleinere Eingangssignale etwas gestreckt, jedoch nicht dem logarithmischen Verlauf des Standardtunnelmodells folgen würde. Der qualitative Verlauf der dielektrischen Funktion wird davon demnach

nicht beeinträchtigt.

Das Abflachen der Daten aufgrund einer nicht thermalisierten Probe kann durch die ständige Beobachtung der Thermalisierungskurve ausgeschlossen werden. Der Verlust besitzt ein Minimum bei etwa 300 mK. Unterhalb des Minimums ist ein leichter Anstieg festzustellen, oberhalb des Minimums steigt der Verlust sehr steil an, bis er bei etwa 5 K in ein Plateau mündet.

#### 4.4.1 Vergleich mit dem Standardtunnelmodell

Im Folgenden wird das Standardtunnelmodell an die Messdaten angepasst und analysiert. Zur Anpassung wurde zunächst der resonante Beitrag durch das Modell angenähert und der Relaxationsanteil sowie das Minimum mithilfe der Relaxation über Mehrphononenprozesse verändert. Der Argumentation im vorhergehenden Abschnitt folgend, wurden die mit  $-79\text{dBm}$  gemessenen Datenpunkte durch eine vertikale Verschiebung an die übrigen Messdaten angepasst. Außerdem wurden die Daten in die Änderung der dielektrischen Funktion umgerechnet, da sich das Standardtunnelmodell auf diese bezieht. Das ist sinnvoll um Messergebnisse verschiedener Aufbauten miteinander zu vergleichen.

Die Resonanzfrequenz im Minimum beträgt 25,48 MHz. Mit  $L = (256 \pm 25)$  nH und  $C_{\text{par}} \approx 3$  pF ergibt sich nach Gl. 3.7 und 3.3 ein Proportionalitätsfaktor  $K$  von

$$K = \frac{1}{1 - C_{\text{par}}/C} = \frac{1}{1 - 4\pi C_{\text{par}} L f_0^2} = 1,020 \pm 0,002. \quad (4.3)$$

Der Effekt der Wahl des Bezugspunktes ist zu vernachlässigen, da die Kapazität sich im Bereich unter 10 K in der Größenordnung von Promille verändert, wodurch der dadurch resultierende Fehler des Proportionalitätsfaktors nur etwa  $10^{-5}$  beträgt. Vom gemessenen Verlustwinkel wurde der intrinsische Verlust des Aufbaus  $\tan(\delta)_{\text{int}} = 7,75 \cdot 10^{-4}$  abgezogen, um nach Gl. 3.6 den Imaginärteil der dielektrischen Funktion zu erhalten.

Die Anpassung des Modells an die Daten ist in Abb. 4.5 aufgetragen und die verwendeten Parameter sind in Tab. 4.1 zusammengefasst.

Der Bereich um das Minimum des Realteils der dielektrischen Funktion zwischen 100 mK und 5 K wird durch das Standardtunnelmodell mit Mehrphononenprozessen gut beschrieben. Oberhalb von 5 K nimmt die Steigung der dielektrischen Permittivität zu. Das könnte an weiteren Relaxationsmechanismen liegen, die erst über 5 K relevant sind. Unter 100 mK flacht die Kurve ab. Das kann nicht mithilfe des Standardtunnelmodells beschrieben werden und hängt möglicherweise mit einer Änderung der effektiven Tunnelaufspaltung durch die Existenz von Kernquadrupolmomenten zusammen. Der Verlauf des dielektrischen Verlusts wird qualitativ vom Modell wiedergegeben, allerdings ist die relative Änderung des Verlustes oberhalb des Minimums



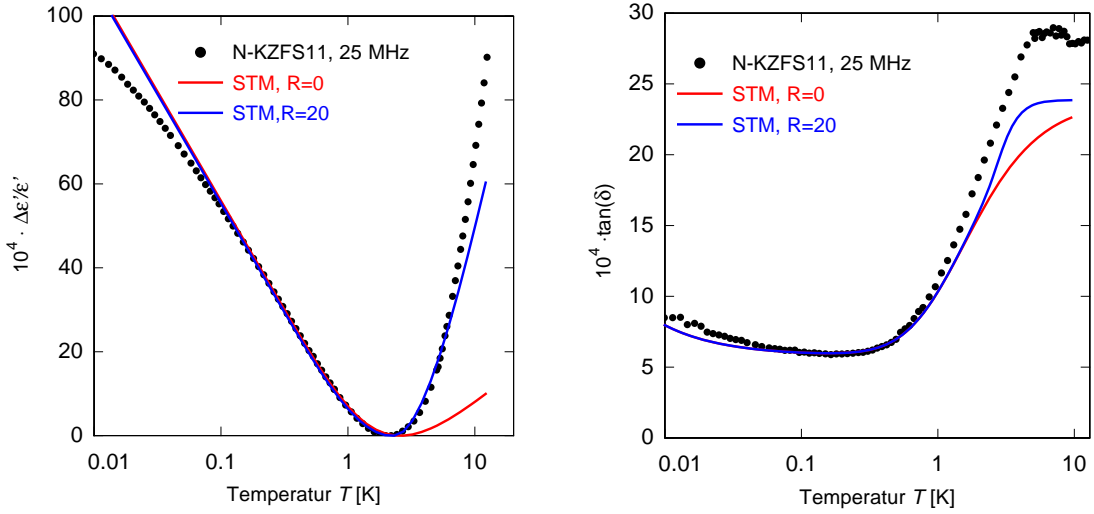


Abbildung 4.5: Anpassung des Standardtunnelmodells mit Mehrphonenprozessen ( $R=20$ ) und ohne ( $R=0$ ) an die gemessene Kapazitätsänderung und den Verlustwinkel von N-KZFS11 zwischen 10 mK und 10 K.

obere Integrationsgrenze	$E_{\max}$	200 K
untere Integrationsgrenze	$\Delta_{0,\min}$	$2 \cdot 10^{-8} K$
Kreisfrequenz	$\omega$	$2\pi \cdot 25 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$
Minimumtemperatur auf 1 kHz skaliert	$T_{\min,1\text{kHz}}$	88 mK
Vorfaktor Mehrphonenprozesse	$R$	$20 \text{ K}^{-7} \text{ s}^{-1}$
Gesamtvorfaktor	$A$	$\frac{1}{580}$
Zusatzbeitrag Verlustwinkel	$c$	+0,58

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der Modellparameter zur Anpassung des Standardtunnelmodells an die Messdaten mit  $f \approx 25,4 \text{ MHz}$

deutlich größer als durch das Modell vorhergesagt und unterhalb von 100 mK steigt der Verlust etwas stärker an, als erwartet. Durch die das Minimum beeinflussenden Mehrphonenprozesse erhält man sehr viele Freiheiten beim Anpassen des Modells. Daher ist es interessanter, alle vorhandenen Daten zur dielektrischen Funktion von N-KZFS11 bei verschiedenen Frequenzen mit dem Standardtunnelmodell zu vergleichen.

#### 4.4.2 Vergleich mit dem Standardtunnelmodell bei allen gemessenen Frequenzen

Die dielektrische Funktion des Glases N-KZFS11 wurde in früheren Experimenten bereits bei Frequenzen im kHz-Bereich [Luc11] und im GHz-Bereich [Wes15] vermessen. In Abb. 4.6 sind alle Messdaten im Tieftemperaturbereich zusammengefasst. Der resonante Anstieg des dielektrischen Realteils vor dem Abflachen scheint für alle Frequenzen gleich steil zu sein. Daraus lässt sich schließen, dass die resonante Kopplung zwischen elektrischem Feld und Tunnelsystemen frequenzunabhängig ist. Das ist bei dem Glas HY-1 mit einem ähnlich großem Kernquadrupolmoment ( $Q = 3,5$  barn durch Holminium) nicht der Fall [Luc] und ist damit als unabhängig von Kernquadrupolmomenten zu betrachten. Bei den niederfrequenten Messungen erkennt man im Bereich der Relaxation eine Steigungsänderung, welche durch das Einsetzen der Mehrphononenprozesse entsteht. Bei den MHz- und GHz-Daten ist dieser nicht sichtbar, da das Einsetzen der Mehrphononenprozesse bereits im Bereich des Minimums einsetzt, weswegen das Minimum bei den hohen Frequenzen schmaler ausfällt.

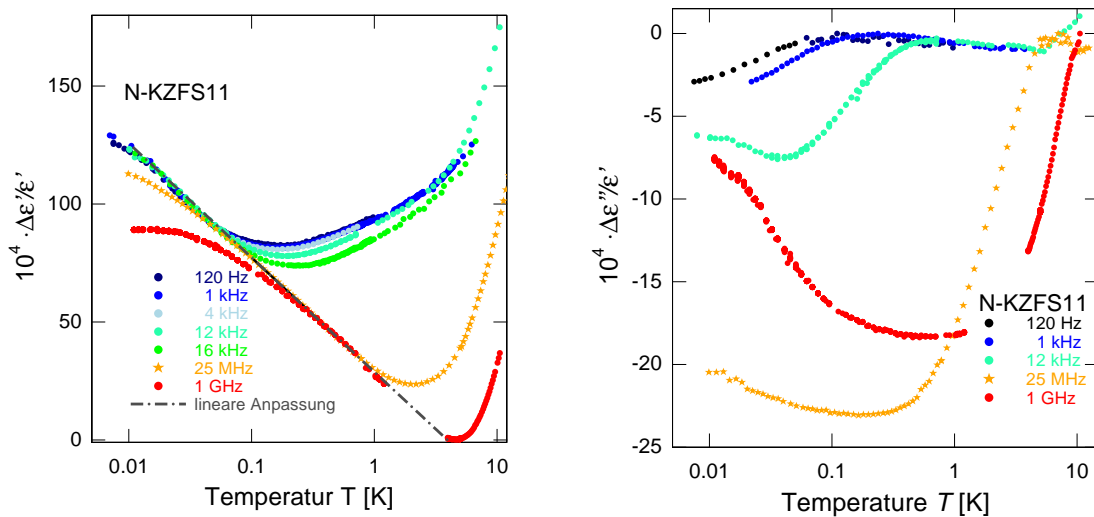


Abbildung 4.6: Zusammenfassende Plots der dielektrischen Funktion von N-KZFS11 bei allen gemessenen Frequenzen. Der Verlust ist jeweils am Plateau der Datenreihe aufgehängt, die Daten des Realteils wurden auf eine Gerade verschoben. Die kHz-Daten stammen aus [Luc14], die GHz-Daten aus [Wes15]

Vergleicht man die Lage der Minima mit der in Kap. 2.3 hergeleiteten Frequenzabhängigkeit der Minimumstemperatur, sind zwei systematische Abweichungen erkennbar: Zum einen ist die Minimumstemperatur bei Frequenzen unter 10 kHz frequenzunabhängig, was mit dem Einfluss der Kernquadrupolmomente zusammenhängt [Luc14]. Zum anderen weisen die Hochfrequenzdaten eine negative Abweichung vom  $f^{1/3}$ -

Zusammenhang auf. Dieser Effekt wird der Verschiebung des Minimums durch Mehrphonenprozesse zu tieferen Temperaturen zugerechnet und zeigt sich im GHz-Regime noch stärker als im in dieser Arbeit untersuchten MHz-Bereich. Das Minimum der hier gemessenen MHz-Daten liegt gerade in dem Temperaturbereich, in welchem die Mehrphonenprozesse einsetzen.

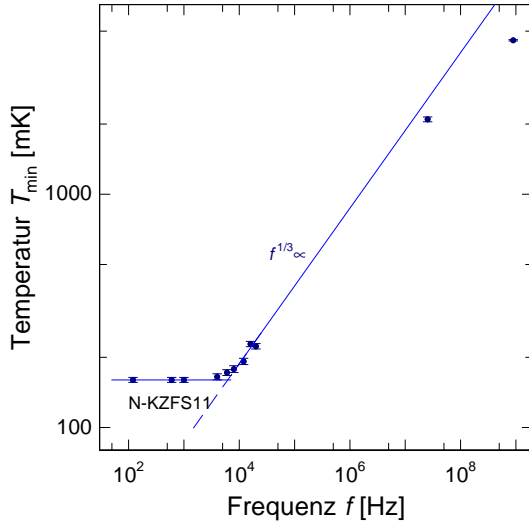


Abbildung 4.7: Vergleich der Minima des dielektrischen Realteils von N-KZFS11 bei verschiedenen Frequenzen mit der Theorie des Standardtunnelmodells, nach der  $T_{\min} \propto \omega^{1/3}$  gilt. Die kHz-Daten sind von [Luc14] und das Minimum der GHz-Daten von [Wes15] vermessenen worden.

Um zu prüfen, ob sich die dielektrische Funktion von N-KZFS11 durch das Standardtunnelmodell beschreiben lässt, wird die Anpassung aus Kap. 4.4.1 mit identischen Parametern auf Messungen verschiedener Frequenzen abgestimmt, wobei nur die Kreisfrequenz der jeweiligen Messfrequenz angepasst wird. Sollte das Standardtunnelmodell zuzüglich der Mehrphonenprozesse eine sinnvolle Beschreibung der Daten darstellen, erwarten wir, dass für Messfrequenzen oberhalb von 10 kHz Realteil und Imaginärteil mit den selben Parametern beschrieben werden können, wie die MHz-Daten. Für niedrigere Frequenzen bleibt abzuwarten, ob die Materialparameter abgesehen vom verschobenen Minimum weiterhin gelten. Die Ergebnisse der Anpassung werden der Übersichtlichkeit wegen für nur einzelne Frequenzen in den verschiedenen Frequenzregimen in Abb. 4.8 präsentiert. Im Realteil wurden sowohl Messdaten als auch Modelle vertikal so verschoben, dass die Tieftemperaturflanken aufeinanderfallen. Im Imaginärteil sind die Plateaus der Modelle und Daten an die Nulllinie angepasst.

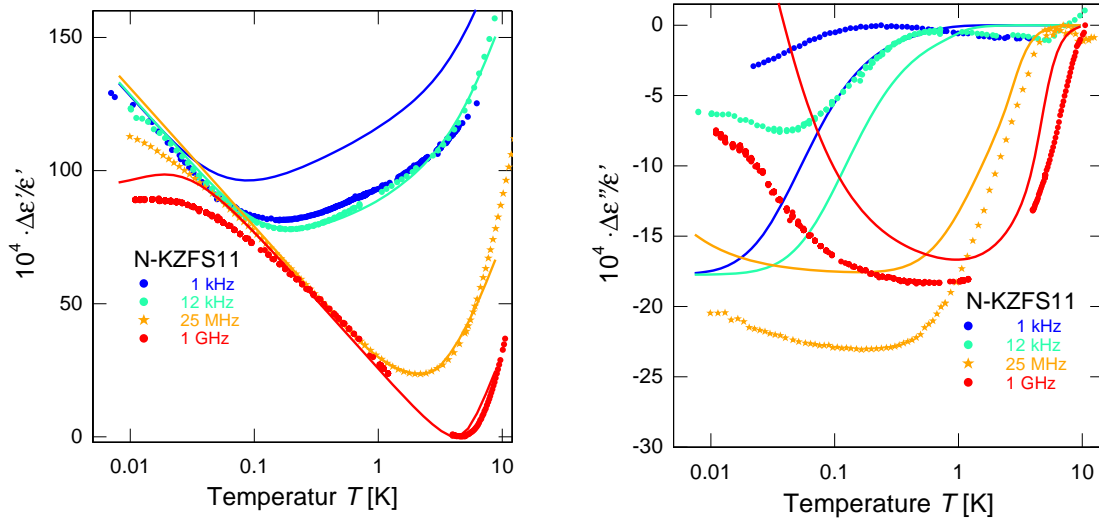


Abbildung 4.8: Anpassung des Standardtunnelmodells mit den Parametern aus Kap. 4.4.1 für die verschiedenen Frequenzregimes an Realteil und Imaginärteil

Der Bereich rund um das Minimum des Realteils kann bei den Frequenzen oberhalb von 10 kHz gut durch die über die MHz-Messung erhaltenen Materialparameter angepasst werden. Auch das Einsetzen der Mehrphononenprozesse bei etwa 3 K, sichtbar bei der 1 kHz-Messung, wird durch die Parameter wiedergegeben. Bei den GHz-Daten liegen die Messpunkte im Bereich der Mehrphononenprozesse in der Nähe des Minimums jedoch leicht unterhalb der Modellierung. Die 1 kHz-Messdaten sind eindeutig gegenüber dem Modell zu höheren Temperaturen verschoben, was durch eine konstante Relaxationsrate  $\tau^{-1} \propto E$  beschrieben werden kann, wie in Abb. 4.7 zu sehen.

Die Anpassung des Imaginärteils mithilfe der Materialparameter scheitert jedoch: Bei den MHz- und GHz-Daten ist die relative Änderung des Imaginärteils größer als vorhergesagt, bei allen niedrigeren Frequenzen allerdings kleiner als das Modell annimmt. Auch der erneute Anstieg des Verlustes zu tiefen Temperaturen bei 12 kHz wird nicht vom Standardtunnelmodell wiedergegeben. Hier kann das Standardtunnelmodell die Prozesse daher nicht beschreiben.

#### 4.4.3 Vergleich mit anderen Gläsern

Eine relativ gute Beschreibung des Realteils von N-KZFS11 bei allen Frequenzen durch das Standardtunnelmodell, wie in Abb. 4.8 gezeigt, entspricht gerade bei einem Glas mit großen Kernquadrupolen nicht den Erwartungen und zeichnet dieses Glas aus im Vergleich zu der großen Anzahl Gläser, welche dem Standardtunnelmodell nicht folgen, selbst wenn sie keine Kernquadrupolmoment tragenden Bestandteile

beinhalten. Da mit dem verwendeten Aufbau weitere Gläser vermessen wurden, bietet es sich an, sie untereinander zu vergleichen.

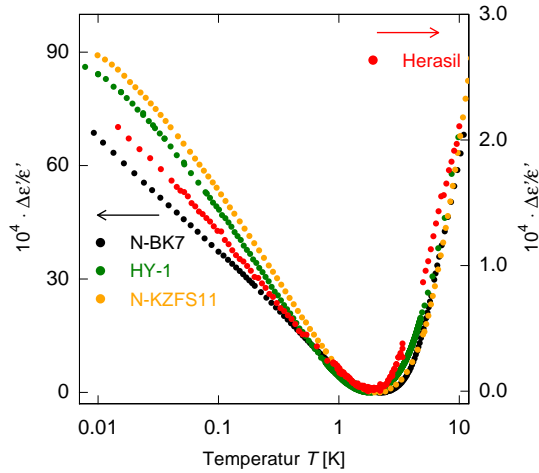


Abbildung 4.9: Vergleich des Realteils der mit dem Aufbau gemessenen Gläser Herasil [Zei15], HY-1 [Bol15] und N-BK7 [Hom15] mit N-KZFS11

In Abbildung 4.9 ist der Realteil der dielektrischen Funktion für alle vermessenen Gläser zwischen 10 mK und 10 K dargestellt.

Die Änderung der dielektrischen Permittivität der Gläser ist qualitativ ähnlich. Allerdings ist die Änderung der dielektrischen Permittivität von Herasil, einem reinen Quarzglas, etwa 30-mal kleiner als die der anderen Gläser und daher anders skaliert. In Herasil dominieren die  $\text{OH}^-$ -Ionen das dielektrische Signal, welche nur etwa 150 ppm der Probe ausmachen, was die andere Größenordnung erklärt. Die Gläser HY-1 und N-KZFS11, welche beide Kerne mit hohen Kernquadrupolmomenten gleicher Größe beinhalten, weisen ein ähnliches Verhalten auf: der resonante Beitrag zur dielektrischen Funktion flacht bei beiden Gläsern zu tieferen Temperaturen hin kontinuierlich stärker ab. Allerdings findet man bei HY-1 keine frequenzunabhängige resonante Kopplung zwischen elektrischem Feld und Tunnelsystemen wie bei N-KZFS11 (Kap. 4.4.2 und [Luc] für HY-1), was ein deutlicher Unterschied zwischen den Gläsern ist. Das Glas N-BK7 ist wie N-KZFS11 und HY-1 ein Multikomponentenglas, beinhaltet jedoch nur Kernquadrupolmomente kleiner als 0,25 barn. Die resonante Kopplung an die Tunnelsysteme ist deutlich anders und die Messkurve flacht nicht ab, jedoch ist im resonanten Anteil eine Steigungsänderung bei etwa 200 mK auszumachen.

Die Minima der Kurven liegen für alle Gläser bei einer ähnlichen Temperatur, wobei neben der strukturellen Ähnlichkeit der Gläser auch die Mehrphononenprozesse relevant sind, die in der Nähe des Minimums einsetzen und für ähnliche Relaxationsraten aller Gläser sorgen.



## 5. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die dielektrische Funktion des Glases N-KZFS11, welches mehrere Prozent Tantal enthält, zwischen 10 mK und 300 K gemessen, um Indizien für den Einfluss der Kernquadrupolmomente auf die dielektrischen Eigenschaften zu prüfen. Dazu wurde die Probe in einem LC-Resonator als Dielektrikum im Kondensator eingesetzt und die Änderung der Resonanzfrequenz und der Güte der Resonanz des Schwingkreises vermessen. Die Anregung des Schwingkreises sowie das Auslesen der Resonanzfrequenz wurde mittels eines schwach an das System gekoppelten Netzwerkanalysators verwirklicht. An die Daten wurde der Theorie des Schwingkreises folgend eine Lorentzfunktion angepasst, deren Frequenz und Güte ausgewertet und in Realteil und Imaginärteil der dielektrischen Funktion umgerechnet wurden. Im Temperaturbereich zwischen 10 und 300 K steigen Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion stark mit der Temperatur an. Im Verlust sind zwei Plateaus auszumachen, wovon das bei 10 K liegende Plateau vom Standardtunnelmodell erwartet wird. Hauptaugenmerk der Messung lag jedoch auf dem Temperaturintervall zwischen 10 mK und 10 K, da in diesem Bereich das Standardtunnelmodell als zu prüfende Theorie existiert. Die Messdaten des Realteils der dielektrischen Funktion lassen sich in einem Bereich von 100 mK bis 5 K gut durch das Standardtunnelmodell mit Einfluss von Mehrphononenprozessen beschreiben. Unterhalb von 100 mK flachen die Daten ab, oberhalb von 5 K scheinen zusätzliche Relaxationsprozesse einzusetzen. Das Minimum des Realteils liegt bei 2,18 K und damit leicht unterhalb des der Vorhersage basierend auf der Ein-Phonon-Relaxation im Vergleich mit den bereits vorhandenen Niederfrequenzdaten, was vermutlich auf den Einfluss der Mehrphononenprozesse zurückzuführen ist. Der gemessene Verlust ändert sich deutlich stärker als vom Standardtunnelmodell vorhergesagt, zeigt jedoch qualitativ den vom Standardtunnelmodell vorhergesagten Temperaturverlauf. Ein interessantes Ergebnis ist, dass die resonante Kopplung zwischen Tunnelsystemen und elektrischem Feld über fünf Größenordnungen in der Frequenz frequenzunabhängig ist, was mit dem Standardtunnelmodell übereinstimmt. Tatsächlich lässt sich der gemessene Realteil bei allen Frequenzen oberhalb von 10 kHz mit denselben Parametern des Standardtunnelmodells beschreiben. Dies ist bei dem Imaginärteil allerdings nicht möglich. Das Standardtunnelmodell erfasst damit nicht gänzlich die Verlusteffekte im Glas.

Im Vergleich mit den anderen im gleichen Aufbau vermessenen Gläsern verhält sich N-KZFS11 im MHz-Bereich ähnlich zu HY-1, welches ebenfalls große Kernquadrupolmomente beinhaltet. Das Abflachen zu niedrigen Temperaturen ist bei beiden Gläsern vorhanden, allerdings nicht bei N-BK7 und Herasil, welche nur kleine, beziehungsweise keine Kernquadrupolmomente beinhalten und ist daher ein Indiz für

den Einfluss der Kernquadrupolmomente.

Im Bezug auf das Glas N-KZFS11 wäre es interessant, magnetfeldabhängige Messungen der dielektrischen Permittivität durchzuführen. Zudem wären Messungen zwischen 10 kHz und 10 MHz sinnvoll, um die  $f^{1/3}$ -Abhängigkeit der Temperatur an der das Minimum in der relativen Permittivitätsänderung auftritt zu unterstützen. Der Einfluss der Mehrphononenprozesse auf den relaxativen Beitrag zur dielektrischen Funktion wird oberhalb weniger Kelvin wichtig. Um dies genauer zu untersuchen, bieten sich Messungen bei Frequenzen oberhalb einiger Megahertz an. Ein neuer Aufbau, mit welchem zwei Frequenzen bei etwa 40 MHz und 80 MHz quasi gleichzeitig messbar sind, wird gerade getestet.

Problematisch an den Multikomponentengläsern, zu denen N-KZFS11 zählt, ist, dass die Dynamik der Bestandteile im Glas sehr komplex ist und auftretende Effekte nicht eindeutig bestimmten Komponenten zuzuordnen sind. Daher könnten mehr amorphe Materialien betrachtet werden, deren Dynamik bei hohen Temperaturen bereits besser verstanden ist und bei denen der Einfluss struktureller Unterschiede betrachtet werden kann. Neben oxidischen Mehrkomponentengläsern könnten auch organische Systeme, aus praktischen Gründen insbesondere Polymere, interessant sein. Ein gezielter Einbau von Kernquadrupolmoment-tragenden Atomen ist bei diesen chemisch möglich, da die Nebengruppen an den Polymerketten gut zu variieren sind. Ein Beispiel dafür sind die Stoffe Polyvinylacetat und Polyvinylchlorid, an welchen bereits Messungen geplant sind.



## Literaturverzeichnis

- [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.
- [Bol15] D. Boll, *Permittivität von HY-1 Glas im MHz-Bereich zwischen 10 mK und 350 K*, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg, 2015.
- [Bur06a] A. L. Burin, I. Ya. Polishchuk, P. Fulde, und Y. Sereda, *Effect of Nuclear Quadrupole Interactions on the Dynamics of Two-Level Systems in Glasses*, Phys. Rev. Lett., **96**, 025505, 2006.
- [Bur06b] 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*, Phys. Rev. B, **73**(1), 014205, 2006.
- [Dä10] D. Dähn, *Messung der dielektrischen Funktion des Tantal-Oxid-Glases N-KZFS11 bei sehr tiefen Temperaturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 2010.
- [Dou80] P. Doussineau, C. Frénois, R.G. Leisure, A. Levelut, und J.-Y. Prieur, *Amorphous-like acoustical properties of Na doped  $\beta$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, J. Phys France, **41**, 1193, 1980.
- [Ens89] C. Enss, C. Bechinger, und M. von Schickfus, *Dynamics of tunneling states in borosilicate glasses*, 474–479, World Scientific, Singapur, 1989.
- [Ens05] C. Enss und S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, Springer, Heidelberg, 2005.
- [Hal12] Angela Halfar, *Entwicklung einer neuen kontaktfreien Messmethode zur Bestimmung der spezifischen Wärme von amorphen Festkörpern bei ultratiefen Temperaturen*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2012.
- [Hom15] G. Homann, *Dielektrische Permittivität des Glases N-BK7 zwischen 8mK und 300K im MHz-Bereich*, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg, 2015.
- [Hun74] S. Hunklinger, *Ultrasonics in Amorphous Materials*, Proc. Ultrasonic Symp. (IEEE), 1974.

- [Jä72] J. Jäckle, *On the ultrasonic attenuation in glasses at low temperatures*, Z. Phys. A, **257**(3), 212, 1972.
- [Luc] A. Luck, Dissertation, Universität Heidelberg, in Vorbereitung.
- [Luc11] A. Luck, *Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften zweier Gläser bei sehr tiefen Temperaturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 2011.
- [Luc14] A. Luck, A. Fleischmann, A. Reiser, und C. Enss, *Effects of Large Nuclear Quadrupoles on Dielectric Properties of Glasses at Very Low Temperatures*, J. Phys: Conf. Series, **568**(3), 032013, 2014.
- [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.
- [Phi72] W. A. Phillips, *Tunneling States in Amorphous Solids*, J. Low Temp. Phys., **7**(3/4), 351, 1972.
- [Rog97] S. Rogge, D. Natelson, B. Tigner, und D. D. Osheroff, *Nonlinear dielectric response of glasses at low temperature*, Phys. Rev. B, **55**, 11256–11262, 1997.
- [Sch14] Schott, *Optical Glass 2014, Description of Properties*, 2014.
- [Sto14] N. J. Stone, *Table of nuclear magnetic dipole and electric quadrupole moments*, 2014.
- [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**, 5361–5364, 1998.
- [Wü02] A. Würger, A. Fleischmann, und C. Enss, *Dephasing of Atomic Tunneling by Nuclear Quadrupoles*, Phys. Rev. Lett., **89**, 237601, 2002.
- [Wes15] P. Wesp, *Dielektrische Permittivität von N-KZFS11 Glas bei hoher Frequenz und tiefen Temperaturen*, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg, 2015.
- [Zei15] A. Zeißner, *Dielektrische Messungen im MHz-Bereich an HY-1 und Herasil zwischen 7 mK und 10 K*, Staatsexamensarbeit, Universität Heidelberg, 2015.
- [Zel71] R. C. Zeller und R. O. Pohl, *Thermal Conductivity and Specific Heat of Noncrystalline Solids*, Phys. Rev. B, **4**(6), 2029, 1971.

# Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei den vielen lieben Menschen herzlich bedanken, die mich rund um die Bachelorarbeit unterstützt und zu ihrem Gelingen beigetragen haben.

Zunächst geht mein Dank an Prof. Christian Enss für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die erste Einführung in dieses interessante Thema.

Für das Korrekturlesen meiner Arbeit und für sein unerschöpfliches Wissen und seine vielen Ideen, die er bereitwillig und geduldig mit mir geteilt hat danke ich Andreas Reiser.

Ein großer Dank geht an Annina Luck für die vielen Hilfestellungen und Diskussionen bezüglich der Glastheorie und dass sie bei Fragen aller Art immer für mich da war, sowie für die viele Zeit die sie in die erste Korrektur meiner Arbeit gesteckt hat.

Andreas Reifenberger und Marius Hempel danke ich für die Zeit im Labor, besonders dafür, dass sie mir soviel Messzeit überlassen haben und mir Einblicke in ihre Experimente gegeben und dabei die Wartezeit auf den nächsten Messpunkt bisweilen verkürzt haben.

Benedikt Frey danke ich für die gemeinsame Einarbeitungszeit im Projektpraktikum, die mir den Einstieg in den Messalltag sehr erleichtert hat. Außerdem danke ich ihm, Marcel Schrodin, Andreas Schaller und Sergej Tsurkan für die lustige Zeit im Büro.

Rudi Eitel hat mich über Monate mit frisch verflüssigtem Helium versorgt, ohne welches diese Arbeit nicht hätte geschrieben werden können. Dafür und für das Wissen um Autos und Technik in den Kaffeepausen vielen Dank!

Vielen Dank, liebe F3- und F4-ler für die schöne Zeit hier und in Regensburg und die gute, hilfsbereite Atmosphäre.

Außerdem geht an all meine Freunde und meine Familie ein: Danke, dass es euch gibt!



# Erklärung

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

Heidelberg, den 18.04.2016

.....

(Carolin Wiebke Scholz)