

INAUGURAL-DISSERTATION
ZUR
ERLANGUNG DER DOKTORWÜRDE
DER
NATURWISSENSCHAFTLICH-MATHEMATISCHEN
GESAMTFAKULTÄT
DER
RUPRECHT-KARLS-UNIVERSITÄT
HEIDELBERG

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Marius Hempel
aus Recklinghausen

Tag der mündlichen Prüfung: 01. Juli 2015

Elastische Eigenschaften von supraleitenden massiven metallischen Gläsern

Gutachter: Prof. Dr. Christian Enss
Prof. Dr. Heinz Horner

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmals die elastischen Eigenschaften eines massiven metallischen Glases mit Hilfe von niederfrequenten akustischen Messungen im Temperaturbereich zwischen 10 mK und 300 K bestimmt. Um den gesamten Temperaturbereich, insbesondere bei niedrigen Temperaturen mit geringen Anregungen zu vermessen, wurden neue Messmethoden entwickelt. Diese beruhen auf der induktiven Auslese eines sogenannten Double Paddle Oszillators. Damit war es möglich die innere Reibung und die Schallgeschwindigkeitsänderung von massiven metallischen Gläsern am Beispiel von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Ti}_{10}\text{Ni}_5$ mit hoher Präzision zu ermitteln. Auf Grund der hohen Qualität der Daten war es möglich diese mit verschiedenen Modellen zu vergleichen. Das Hauptaugenmerk der Analyse wurde auf den Bereich tiefer Temperaturen gelegt, wo die Eigenschaften von Gläsern durch atomare Tunnelsysteme, wie im Standardtunnelmodell phänomenologisch beschrieben, dominiert werden. Bei der theoretischen Beschreibung wurde sowohl der Einfluss von Leitungselektronen im normalleitenden, als auch von Quasiteilchen im supraleitenden Zustand des Glases berücksichtigt, wodurch in einem großen Temperaturbereich eine gute Übereinstimmung der Messdaten mit Vorhersagen des Standardtunnelmodells gefunden wurde, was eine direkte Bestimmung der Elektron-Tunnelsystem-Kopplungskonstante erlaubte. In dem Temperaturbereich unmittelbar um die Sprungtemperatur T_c können die Daten nur dann beschrieben werden, wenn eine modifizierte Verteilungsfunktion der Tunnelparameter verwendet wird.

Elastic properties of superconducting bulk metallic glasses

Within the framework of this thesis the elastic properties of a superconducting bulk metallic glass between 10 mK and 300 K were first investigated. In order to measure the entire temperature range, in particular the low temperature part, new experimental techniques were developed. Using an inductive readout scheme for a double paddle oscillator it was possible to determine the internal friction and the relative change of sound velocity of bulk metallic glasses with high precision. This allowed for a detailed comparison of the data with different models. The analysis focuses on the low temperature regime where the properties of glassy materials are governed by atomic tunneling systems as described by the tunneling model. The influence of conduction electrons in the normal conducting state and quasiparticles in the superconducting state of the glass were accounted for in the theoretical description, resulting in a good agreement over a large temperature range between measured data and prediction of the tunneling model. This allowed for a direct determination of the coupling constant between electrons and tunneling systems. In the vicinity of the transition temperature T_c the data can only be described if a modified distribution function of the tunneling parameters is applied.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie	3
2.1	Metallische Gläser	3
2.1.1	Struktur metallischer Gläser	6
2.2	Gläser bei tiefen Temperaturen	10
2.3	Tunnelsysteme in amorphen Festkörpern	13
2.3.1	Standardtunnelmodell	13
2.3.2	Zwei-Niveau-Systeme im Doppelmuldenpotential	14
2.3.3	Verteilungsfunktion und Zustandsdichte	16
2.3.4	Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit elastischen Feldern	17
2.3.5	Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit Elektronen	25
2.3.6	Integration der Beiträge und Vorhersagen des Tunnelmodells	30
3	Experimentelle Methoden	41
3.1	Probe	41
3.1.1	Material	41
3.1.2	Double-Paddle-Oszillator	44
3.2	Durchführung des Experiments	50
3.2.1	Experimenteller Aufbau	50
3.2.2	Kapazitive Anregung und Detektion	51
3.2.3	Induktive Detektion	54

3.2.4	Messprinzip	60
3.3	Thermometrie	67
3.3.1	Thermalisierung der Probe	67
3.3.2	Fixpunktthermometer	69
3.3.3	Rauschthermometer	71
3.3.4	Kohlethermometer	74
4	Ergebnisse und Diskussion	75
4.1	Einflüsse auf die Messungen	75

1. Einleitung

Eine der elegante Methode mehr über die Natur eines Objektes zu lernen, ist es, das Objekt selbst zum Messinstrument zu machen. Ein gutes Beispiel dafür ist eine Stimmgabel. Schlägt man sie an, so hört man einen Ton einer bestimmten Höhe, der mit der Zeit leiser wird. Dieser Ton setzt sich aus den angeregten Eigenschwingungen der Stimmgabel zusammen, deren Amplitude sich nach und nach verringert. Für die Tonhöhe ist neben der Geometrie der Stimmgabel das Material verantwortlich, aus dem sie hergestellt wurde. Ist der Umgebungsdruck hinreichend gering, reduziert sich die Schwingungsamplitude hauptsächlich auf Grund energiedissipativer Prozesse, die innerhalb des Materials selbst ablaufen. Misst man also Tonhöhe und Lautstärke, so kann man direkt auf die Eigenschaften des untersuchten Materials rückschließen.

Eine analoge Messmethode bietet einen eleganten Zugang zur Physik der Gläser, wobei die Stimmgabel ein schwingendes Plättchen ist und die Amplitude der Schwingung kapazitiv oder induktiv gemessen wird. Amorphe Festkörper unterscheiden sich auf Grund ihrer atomar ungeordneten Struktur von kristallinen Festkörpern. Auch in ihren makroskopischen thermodynamischen Eigenschaften gibt es Unterschiede. Besonders auffällig treten diese Unterschiede zu Tage, wenn man sich Gläser bei sehr tiefen Temperaturen näher anschaut. Bereits 1971 untersuchten Zeller und Pohl die thermischen Eigenschaften von Quarzglas unterhalb weniger Kelvin und stellten dabei erhebliche Unterschiede zu denen von chemisch äquivalentem Quarzkristall fest [Zel71]. Diese Experimente sowie viele weitere, bei denen die dielektrischen, thermischen und elastischen Eigenschaften einer Vielzahl von Gläsern untersucht wurden, weisen alle beträchtliche Unterschiede zu entsprechenden Kristallen auf. Untereinander verglichen, zeigen chemisch teilweise sehr unterschiedliche Gläser trotzdem ein sehr ähnliches Verhalten bei tiefen Temperaturen.

Einen Erklärungsansatz für die Tieftemperatureigenschaften der Gläser sowie deren „Universalität“ stellten 1972 Anderson *et al.* [And72] und Phillips [Phi72] mit dem sogenannten Standardtunnelmodell vor. Dieses basiert auf der Annahme von niederenergetischen Anregungszuständen, welche sich auf Grund der ungeordneten Struktur in Gläsern ergeben. Diese sogenannten Tunnelsysteme entstehen, wenn sich einzelne Atome oder Gruppen von Atomen mit Hilfe eines Tunnelprozesses zwischen zwei energetisch nahezu äquivalenten Gleichgewichtslagen bewegen.

Mit Hilfe dieses Modells konnten zahlreiche Beobachtungen erklärt werden. Weitere Experimente förderten allerdings auch Ergebnisse zu Tage, die sich mit Hilfe des Tunnelmodells in seiner ursprünglichen Form nicht oder nur unbefriedigend beschreiben lassen und nach Erweiterungen verlangen. Hunklinger und Arnold zeigten bereits 1975, dass Tunnelsysteme direkt miteinander wechselwirken können [Arn75]. Wür-

ger, Fleischmann und Enss konnten 2002 zeigen, dass Kernquadrupolmomente von tunnelnden Teilchen berücksichtigt werden müssen [Wür02].

Mit der Entwicklung von massiven metallischen Gläsern steht seit einigen Jahren eine neue Materialklasse für die Untersuchung von glasartigen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen zur Verfügung [Löf03]. Metallische Gläser zeichnen sich neben der charakteristischen Unordnung durch die Anwesenheit von Leitungselektronen aus, welche mit den Tunnelsystemen wechselwirken können. Neben thermischen eignen sich in diesem Fall insbesondere akustische Experimente, um die vom Standardtunnelmodell gemachten Vorhersagen zu überprüfen. Obschon erste Erkenntnisse zur Wechselwirkung von Leitungselektronen mit Tunnelsystemen anhand von Experimenten mit folienartigen metallischen Gläsern gewonnen werden konnten, zeigen die Messergebnisse mitunter widersprüchliche Ergebnisse [Ray84, Esq86]. Die zum damaligen Zeitpunkt verfügbaren Proben waren nur eingeschränkt brauchbar für diese Messungen, was eine systematische Untersuchung der elastischen Eigenschaften von metallischen Gläsern nicht erlaubte.

Im Rahmen dieser Arbeit ist erstmals ein Double-Paddle-Oszillator – nicht unähnlich einer Stimmgabel – vollständig aus massivem metallischen Glas hergestellt worden. Dessen elastische Eigenschaften sind im Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 10 mK mit Hilfe akustischer Messungen untersucht worden. Dazu wurden eine Reihe von neuen Messmethoden entwickelt, die auf der induktiven Auslese eines sogenannten Double-Paddle-Oszillators beruhen. Die damit erzielten Messergebnisse hoher Qualität erlauben eine qualitative und präzise quantitative Analyse. Dabei stellt sich heraus, dass sich die Messergebnisse in einem weiten Temperaturbereich mit Hilfe des Standardtunnelmodells unter Berücksichtigung von zusätzlicher Relaxation auf Grund von Leitungselektronen und Quasiteilchen beschreiben lassen.

In Kapitel 2 erfolgt zunächst eine kurze Einführung zu metallischen Gläsern und die Vorstellung des Standardtunnelmodells sowie den daraus folgenden Vorhersagen der elastischen Eigenschaften. Kapitel 3 enthält eine Charakterisierung der verwendeten Probe und Beschreibung der experimentellen Methoden sowie des Messprinzips. In Kapitel 4 werden die gewonnenen Messergebnisse präsentiert und mit den Vorhersagen des Standardtunnelmodells verglichen. Dabei wird aufgezeigt, inwieweit das Modell die Daten beschreibt und in welchen Aspekten eine Erweiterung notwendig ist.

2. Theorie

Festkörper lassen sich basierend auf ihrer atomaren Struktur in zwei Klassen einteilen. Diejenigen, die eine regelmäßige Anordnung der Atome bzw. Moleküle aufweisen, welche sich über die gesamte Ausdehnung des Festkörpers periodisch wiederholt, bezeichnet man als Kristalle. Ihre Struktur weist sowohl Nah- als auch Fernordnung auf. Zum anderen gibt es die Klasse der amorphen Festkörper, auch Gläser genannt, bei welchen keinerlei Fernordnung vorliegt. Gläser entstehen, wenn Schmelzen oder Flüssigkeiten derart schnell abgekühlt werden, dass die Atome oder Moleküle nicht ausreichend Zeit haben sich regelmäßig anzuordnen.

Unabhängig davon, ob es sich um oxidisches Silikat, ein organisches Polymer oder um metallische Gläser handelt, ist ihnen gemein, dass ihre Struktur zwar keine Fernordnung, wohl aber eine gewisse Nahordnung aufweist. Für die auf Siliziumdioxid basierenden Gläser beispielsweise bedeutet dies, dass sie aus einem wenig geordneten Netzwerk von aneinandergereihten SiO_4 -Tetraedern bestehen. Innerhalb dieser Tetraeder sind die Bindungslängen und -winkel zwischen den Atomen annähernd identisch zu denen im Quarzkristall, wohingegen zwischen ihnen die geordnete Struktur fehlt. Diese Unordnung führt dazu, dass viele physikalische Eigenschaften von Gläsern stark von denen ihrer kristallinen Pendanten abweichen. Das Hauptaugenmerk dieser Arbeit richtet sich auf die Erforschung der elastischen Eigenschaften von Gläsern bei sehr tiefen Temperaturen. In diesem Temperaturbereich werden die elastischen, thermischen und dielektrischen Eigenschaften von Gläsern durch die Anwesenheit von Tunnelsystemen dominiert, worauf in Abschnitt 2.2 eingegangen wird.

In diesem Kapitel werden zunächst metallische Gläser vorgestellt, welche eine vergleichsweise junge Materialklasse darstellen. Anschließend wird nach einer knappen Beschreibung der Tieftemperatureigenschaften von Gläsern das Standardtunnelmodell vorgestellt, welches die Grundlage der theoretischen Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit erfolgten Messungen und deren Auswertung legt.

2.1 Metallische Gläser

Dass Flüssigkeiten nicht aus einer Ansammlung von zufällig verteilten Mikrokristallen bestehen, sondern ein eigener Aggregatzustand sind, welcher eine fundamental andere Struktur aufweist als die kristalline, wurde bereits in den späten 1940er Jahren von Turnbull et al. gezeigt. Er demonstrierte anhand mehrerer einfacher metallischer Flüssigkeiten, dass es möglich ist, sie weit unter den Gefrierpunkt zu unterkühlen ohne Kristallisation hervorzurufen [Tur50]. Das Ausbleiben der Kristallisation einer

Flüssigkeit oder Schmelze wird begünstigt von deren materialspezifischen Viskosität. Da bei amorphen Festkörpern keine Kristallisation erfolgt, nennt man das Erstarren der Schmelze den Transformationsbereich [Sey94], welcher etwa bei der Glasübergangstemperatur T_g endet, die dadurch festgelegt ist, dass hier das Glas eine Viskosität von 10^{13} Poise hat. Die Glasübergangstemperatur, bei der sich physikalische Eigenschaften wie Wärmekapazität, Wärmeleitfähigkeit oder Ausdehnungskoeffizient stark ändern, liegt bei etwa zwei Drittel der Schmelztemperatur [Tur69] des entsprechenden kristallinen Materials. Der unterkühlte Flüssigkeitsbereich $\Delta T = T_x - T_g$ ist definiert als der Temperaturbereich zwischen der Temperatur des Glasübergangs T_g (Abbildung 2.2) und der der Kristallisation T_x . Innerhalb dieses Temperaturbereichs findet keine Kristallisation statt.

Basierend auf ihrer Arbeit zur Temperaturabhängigkeit atomaren Transports in einfachen Flüssigkeiten sagten Cohen und Turnbull voraus, dass es prinzipiell für jede Flüssigkeit, einschließlich metallischer, möglich sein müsse in den amorphen Zustand überführt zu werden [Coh59]. Sie erklärten, dass sich Legierungen mit einem sehr niedrigen eutektischen Punkt (Erstarrungstemperatur eines binären Systems) besonders als Glasbildner eignen würden [Coh61].

Die erste Realisierung eines metallischen Glases gelang Duwez, Willens und Klement 1959 [Kle60]. Die von ihnen verwendete Legierung war eine Gold-Silizium-Legierung im Verhältnis 4:1, welche ein besonders niedrigen eutektischen Punkt besitzt. Um die erforderlichen großen Abkühlraten zu erzeugen, die notwendig sind, damit die Atome während des Erstarrens nicht genügend Zeit haben an die energetisch günstigen Gitterplätze zu gelangen, entwickelten sie das Melt-Spinning-Verfahren [Duw60]. Hierbei wird die schnell abzukühlende Legierung auf einen sich drehenden Kupfer-

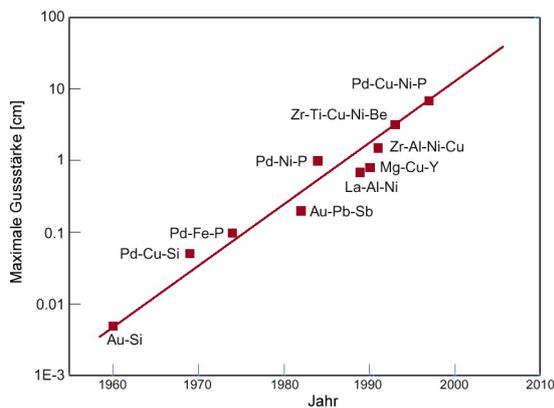


Abb. 2.1: In 40 Jahren konnte die kritische Gusstärke metallischer Gläser um mehr als 3 Größenordnungen gesteigert werden. [Löf03]

zylinder geleitet. Mit den so ermöglichten Abkühlraten von 10^4 – 10^7 K/s gelang es ihnen auch Kupfer-Silberlegierungen in den amorphen Zustand zu bringen. Die mit dieser Methode hergestellten metallischen Gläser waren allerdings noch sehr dünn. In den folgenden Jahren wurden neue Methoden zur Erzeugung massiver metallischer Gläser entwickelt und unzählige weitere metallische Legierungen gefunden,

die immer größere Gussstärken und immer größere unterkühlte Bereiche besaßen. Ein Überblick ist in Abbildung 2.1 zusammengestellt, wo die maximale Gussstärke metallischer Gläser zusammen mit dem Jahr, in dem sie entwickelt worden sind, aufgetragen ist. Man erkennt, dass die Gussstärke in 40 Jahren um 3 Größenordnungen gesteigert werden konnte.

Neben dem bereits von Turnbull für gute Glasbildnereigenschaft genannten Schlüsselkriterium der hohen reduzierten Glastemperatur $T_{rg} = T_g/T_m$, wobei T_g die Glasübergangstemperatur und T_m die Schmelztemperatur ist [Tur69], wurden weitere Kriterien gefunden, welche für eine langsame Kristallisation und daher stabilen unterkühlten Bereich notwendig sind [Ino99, Ino00]. Zum einen eignen sich Multi-Komponenten-Legierungen aus mindestens drei verschiedenen Elementen besonders, da deren Kristalleinheitszellen besonders groß und komplex sind. Dadurch wird das Ausbilden einer kristallinen Fernordnung erschwert, wodurch der Energiegewinn zur Ausbildung der Fernordnung reduziert ist. Des weiteren führt ein großer Atomradienunterschied der einzelnen Elemente der Legierung zu einer höheren Dichte und geringerem freien Volumen in der Schmelze, da Räume zwischen großen Atomen effektiver durch Atome mit geringerem Radius besetzt werden können. Dies führt zu einer gesteigerten Volumenvergrößerung bei der Kristallisation, da nun die Atome Gitterplätze einnehmen. Schließlich ist es vorteilhaft, wenn zwischen den Hauptelementen der Legierung eine möglichst große negative Mischungsenthalpie herrscht, da hierdurch die Energiebarriere an der fest-flüssig-Phasengrenze erhöht und das atomare Diffusionsvermögen verringert wird. Die Verringerung des Diffusionsvermögens hat zur Folge, dass eine atomare Umorientierung – und somit Bildung von Kristallisationskeimen – verlangsamt wird [Tel04]. Eine Vergrößerung des unterkühlten Bereiches ist die Folge.

Abbildung 2.2 zeigt den typischen Verlauf einer Differenzkalorimetrieaufnahme eines metallischen Glases, in diesem Fall von $Zr_{65}Al_{7.5}Cu_{17.5}Ni_{10.0}$. Nach der endothermen

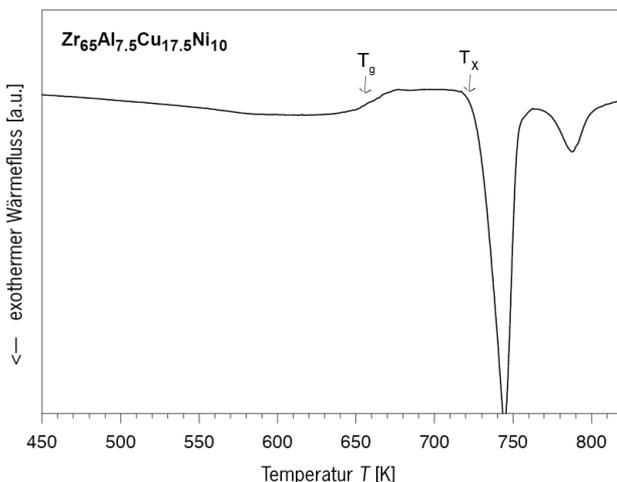


Abb. 2.2: Dynamische Differenzkalorimetrieaufnahme (DSC). T_g bezeichnet die Glasübergangstemperatur und T_x die Kristallisationstemperatur. Innerhalb des unterkühlte Flüssigkeitsbereichs $\Delta T = T_x - T_g$ findet keine Kristallisation statt. Nach [Rei99].

Phase des Glasübergangs folgt bei höherer Temperatur die exotherme Kristallisation. Auf Grund der verzögerten Relaxation in dynamischen Systemen hat der Glasübergang eine endliche Breite [Jäc86]. Das exotherme Verhalten bei der Kristallisation erklärt sich dadurch, dass die Atome durch die Umorientierung an die energetisch günstigeren Gitterplätze gelangen.

Auf Grundlage dieser Erkenntnisse konnte die maximale Gussstärke metallischer Gläser immer weiter vergrößert werden, da immer geringere kritische Abkühlraten notwendig waren. Dies ermöglichte die Herstellung massiver metallischer Gläser (engl. Bulk-Metallic-Glasses=BMG). Chen produzierte 1969 einige metallische Gläser, die einen unterkühlten Bereich von mehr als 40 K hatten, sodass erstmals Kristallisation in metallischen Gläsern systematisch untersucht werden konnte [Che69]. Kui, Greer und Turnbull gelang es dann 1982 erstmalig kubikzentimetergroßes metallisches Glas aus der ternären Mischung $\text{Pd}_{40}\text{Ni}_{40}\text{P}_{20}$ herzustellen [Kui84]. Seitdem stellte die Gruppe um Inoue [Ino88] und die um Johnson [Joh86] viele neue Multikomponentengläser her, die große unterkühlte Bereiche und geringe kritische Abkühlraten haben. Moderne metallische Gläser haben kritische Abkühlraten, die durchaus im Bereich der Abkühlraten von Oxidgläsern liegen. So hat die Legierung $\text{Pd}_{40}\text{Cu}_{30}\text{Ni}_{10}\text{P}_{20}$ eine kritische Abkühlrate von 0,1 K/s [Nis97].

Neben der Erforschung immer weiterer Multikomponentenlegierungen und ihrer makroskopischen Eigenschaften wurden auch Fortschritte bei der Aufklärung der ihnen zur Grunde liegenden Struktur gemacht.

2.1.1 Struktur metallischer Gläser

Einen großen Fortschritt machte die Forschung zur Strukturaufklärung metallischer Gläser als Cargill zeigte, dass die radiale Paarverteilungsfunktion von amorphen

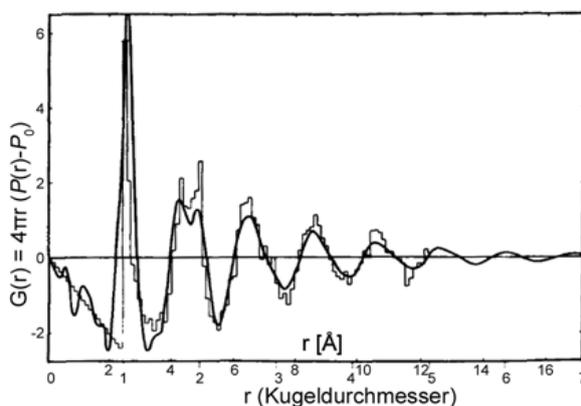


Abb. 2.3: Vergleich radialer Paarverteilungsfunktion von amorphem $\text{Zr}_{76}\text{P}_{24}$ (Linie) und der zufälligen Verteilung harter Kugeln [Fin70] (Histogramm). Aus [Car70].

NiP-Legierungen, welche er anhand von Röntgendiffraktometrieaufnahmen erhielt, annähernd identisch zu jener ist, welche Finney [Fin70] erhielt, als er die zufällige Verteilung identischer harter Kugeln untersuchte [Car70] (siehe Abbildung 2.3).

Erste systematische Untersuchungen dieser Art waren bereits von Scott [Sco62] und von Bernal [Ber60] gemacht worden, die zeigen konnten, dass die Zusammensetzung zufällig verteilter Kugeln Tetraederstrukturen ergibt. Bernals Modell zur zufälligen Verteilung harter Kugeln und seine computerunterstützten Nachfolger werden zur Erklärung von Strukturen in Flüssigkeiten angewandt.

Zuvor hatte man vermutet, dass die Nahordnung in metallischen Schmelzen jener ihrer entsprechenden Kristalle ähnele, was zur Formulierung mikrokristalliner Modelle führte. Diese besagten, dass ein amorpher Festkörper aus Mikrokristalliten mit einigen hundert Atomen bestünde. Turnbolls Entdeckungen widerlegten solche Modelle. Frank stellte die These auf, dass es in Flüssigkeiten und Gläsern polytetraeder-basierte Nahordnung geben müsse. Er wies darauf hin, dass ein Cluster aus zwölf Atomen die sich um ein Zentralatom anordnen, eine größere Bindungsenergie besitzt und somit stabiler ist, als ein Kuboktaedercluster, wie er in Abbildung 2.4a dargestellt ist [Fra52]. Abbildung 2.4 zeigt die Darstellung zweier möglicher Anordnungen von

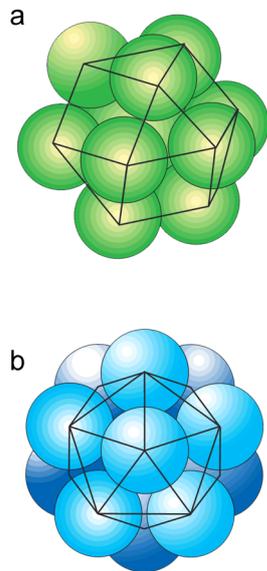


Abb. 2.4: Dreizehn identische Atome haben die Möglichkeit (a) sich als Kuboktaeder anzuordnen (bekannt als dichteste Kugelpackung), welche eine unendliche Fortsetzung im dreidimensionalen Raum erlaubt oder eine (b) ikosaedrische Struktur anzunehmen, welche eine größere Bindungsenergie besitzt [Fra52]. Aus [Spa00].

dreizehn identischen Atomen. Zum einen haben sie die Möglichkeit (a) sich als Kuboktaeder anzuordnen. Diese Struktur führt zur optimalen Raumausnutzung, auch da sie eine unendliche Fortsetzung im dreidimensionalen Raum erlaubt. Die andere Möglichkeit ist, eine ikosaedrische Struktur anzunehmen (b). Sie kann als symmetrische Ansammlung von minimal veränderten Tetraedern betrachtet werden und besitzt gegenüber dem Kuboktaeder eine größere Bindungsenergie, was zu einem stabileren Cluster führt.

Ordnet man zwanzig Tetraeder um einen gemeinsamen Punkt, so erhält man einen Ikosaeder. Ikosaeder kann man auch als zwölf ineinandergreifende Fünffachringe betrachten, was zu einer Fünffachsymmetrie führt. Diese Fünffachsymmetrie und somit ikosaedrische Struktur konnte erstmals direkt mit Hilfe von Röntgenstreuung an der

flüssig-fest-Phasengrenze von Blei beobachtet werden [Rei00], nachdem sie bereits über 40 Jahre zuvor vermutet worden war.

Dass auch multikomponentiges massives metallisches Glas, wie das in dieser Arbeit vermessene zirkonbasierte BMG $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ ikosaedrische Nah- und mittelreichweitige Ordnung besitzt, konnte anhand mehrerer unterschiedlicher experimenteller Ergebnisse gezeigt werden. Wie bereits erwähnt, konnten Reichert *et al.* anhand von Röntgenuntersuchungen zeigen, dass ikosaedrische Nahordnung (ISRO) bereits in unterkühltem flüssigem Blei vorhanden ist [Rei00]. Gleiches konnten Schenk *et al.* für tief unterkühltes flüssiges Zirkon, Eisen und Nickel zeigen, welches sie mittels Neutronenstreuung untersuchten [Sch02]. Abbildung 2.5 zeigt eine hochaufgelöste Transmissionselektronenmikroskopieaufnahme (a) von amorphem $\text{Zr}_{70}\text{Pd}_{30}$ und das dazugehörige Elektronenbeugungsbild (b), welches mit einem Elektronenstrahl mit $1\ \mu\text{m}$ Durchmesser aufgenommen wurde. Das Beugungsbild zeigt ausschließlich

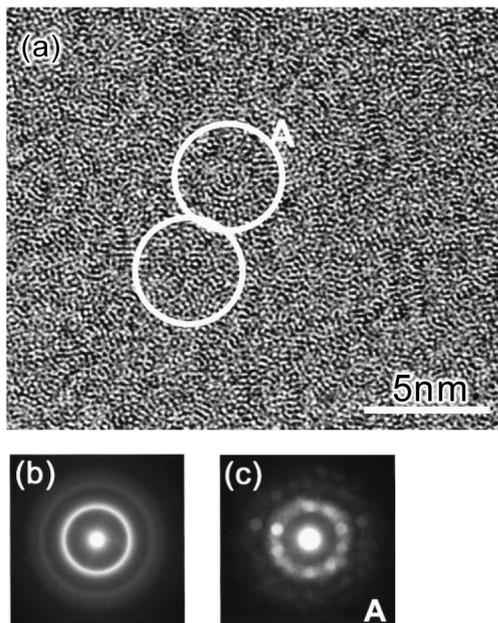


Abb. 2.5: Hochaufgelöstes TEM-Bild (a) von amorphem $\text{Zr}_{70}\text{Pd}_{30}$. Das Elektronenbeugungsbild (b) wurde mit einem Elektronenstrahl mit $1\ \mu\text{m}$ Durchmesser aufgenommen, während jenes in (c) mit einem Elektronenstrahl von nur einem nm in dem mit 'A' gekennzeichneten Bereich erzeugt wurde. Man erkennt anhand der zehn hellen Reflexe, eine Fünffachsymmetrie im Beugungsbild (c), was auf eine lokale ikosaedrische Struktur in der allgemein amorphen Struktur weist. Aus [Sai01].

gleichmäßige Ringe, was auf eine amorphe Struktur hinweist. Das Beugungsbild in (c) hingegen wurde mit einem Nanostrahl von nur einem nm Durchmesser in dem mit 'A' gekennzeichneten Bereich erzeugt und kann auf Grund des geringen Elektronenstrahldurchmessers lokale Strukturen auflösen. Das Beugungsmuster zeigt eine Fünffachsymmetrie, was auf eine lokale ikosaedrische Struktur hinweist.

Detailliertere Erkenntnisse über lokale und mittelreichweitige Ordnung in amorphen BMGs wurden in den letzten Jahren mit immer leistungsfähigeren Computersimulationen gewonnen. Diese kommen zu dem Ergebnis, dass es eine Vielzahl ikosaedrischer Polytetraedercluster gibt, die die Nahordnung ausmachen. Diese Polytetraedercluster sind untereinander verbunden und erzeugen so eine mittelreichweitige Struktur.

Ikosaedrische mittelreichweitige Ordnung (IMRO) entsteht, wenn Ikosaeder sich mittels einzelner oder mehrerer Atome zu größeren Clustern zusammenschließen. Dies passiert, wenn die Schmelze nahe der Glasübergangstemperatur weiter abkühlt und so eine engere Kugelpackung notwendig wird. Wie in Abbildung 2.6 zu sehen ist, gibt es mehrere Varianten, wie sich ikosaedrische Cluster zu größeren zusammenschließen können. Es sind jeweils zwei Cluster über eine gemeinsame (a) Ecke (VS von vortex-sharing), (b) Kante (ES von edge-sharing) oder (c) Front (FS von face-sharing) miteinander verbunden. Greifen sie weiter ineinander, wie in Teil (d) zu sehen ist, spricht man von gemeinsamen Tetraedern (TS von tetrahedra-sharing). Abbildung 2.7 schließlich zeigt einen Supercluster aus 85 Atomen, der aus neun Einzelikosaedern besteht, die über die gerade beschriebenen Verbindungen zusammengesetzt sind [Che09].

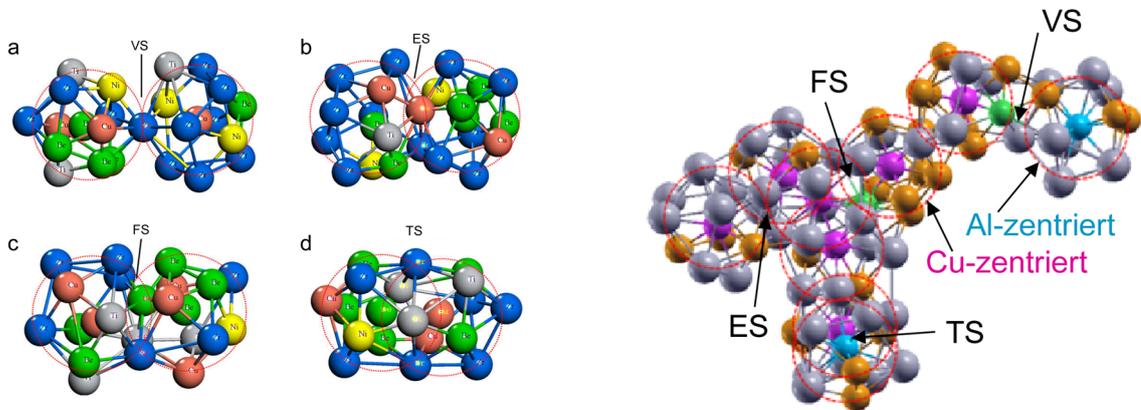


Abb. 2.6: Bildausschnitte (a–c) zeigen zwei Polyeder, die jeweils über eine gemeinsame Ecke (VS), Kante (ES), oder Front (FS) verbunden sind. Ein gemeinsamer Tetraeder (TS) verbindet die zwei Ikosaeder in Teil (d). Aus [Hui09].

Abb. 2.7: Neun Einzelikosaeder, durch rote Kreise kenntlich gemacht, sind, wie in der Abbildung links beschrieben, miteinander verbunden und bilden auf diese Weise einen Supercluster aus 85 Atomen. Aus [Che09].

Die an BMGs durchgeführten Experimente und durch Computersimulationen gewonnenen Erkenntnisse haben viel zum Verständnis der Struktur metallischer Gläser beigetragen. Auch wenn die hier beschriebenen Erkenntnisse auf die Materialklasse der Zr-basierten Multikomponenten-BMGs verallgemeinert werden können, so hängt die genaue Struktur letztlich von der individuellen Zusammensetzung der Legierung selbst ab.

2.2 Gläser bei tiefen Temperaturen

Dass sich amorphe Festkörper bei tiefen Temperaturen, also unterhalb weniger Kelvin, in ihren physikalischen Eigenschaften fundamental von ihren kristallinen Pendanten unterscheiden, überrascht zunächst, da die Wellenlänge der dominanten Phononen hier um Größenordnungen länger ist, als der mittlere Atomabstand. Im Rahmen des Debye-Modells werden Phononen als kollektive Schwingungsanregungen eines Festkörpers eingeführt [Deb12]. Damit lassen sich die thermischen und elastischen Eigenschaften von Kristallen erfolgreich erklären. Allerdings machte Debye innerhalb des nach ihm benannten Modells keinerlei einschränkende Annahmen zu der mikroskopischen Struktur des zu Grunde liegenden Festkörpers, welcher als ein isotropes Kontinuum behandelt wird.

Spezifische Wärme

Zeller und Pohl zeigten in ihrer wegweisenden Arbeit 1971, dass es so wohl quantitativ als auch qualitativ erhebliche Unterschiede zwischen den thermischen Eigenschaften von Kristallen und Gläsern gibt [Zel71]. Abbildung 2.8 zeigt einen etwa linearen Verlauf der spezifischen Wärme von Quarzglas als Funktion der Temperatur unter einem Kelvin. Zudem ist auch die Vorhersage des Debye-Modells eingezeichnet. Sie sagt eine T^3 -Abhängigkeit der spezifischen Wärme mit der Temperatur voraus, die sich direkt aus der Zustandsdichte langwelliger akustischer Phononen und der Bose-Einstein Statistik ergibt. Bei tiefsten Temperaturen liegt die spezifische Wärme von Quarzglas mehrere Größenordnungen höher als von Quarzkristallen. Da die Wellenlänge der dominanten Phononen hier, wie bereits erwähnt, weit länger als der

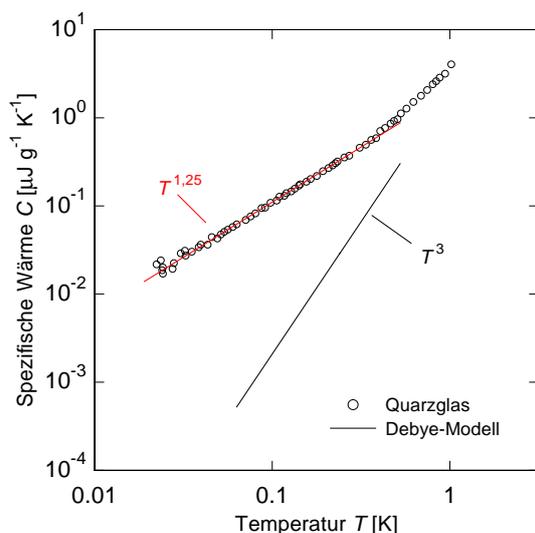


Abb. 2.8: Spezifische Wärme C von Quarzglas als Funktion der Temperatur. Man erkennt eine $C \propto T^{1,25}$ -Abhängigkeit. Für einen Quarzkristall erwartet man nach dem Debye-Modell eine T^3 -Abhängigkeit, welche ebenfalls eingezeichnet ist. [Zel71].

mittlere Atom- oder Molekülabstand ist, kann die exakte atomare Struktur keinen Einfluss auf deren Ausbreitung haben. Daher muss es einen weiteren Mechanismus geben, der zu der stark erhöhten spezifischen Wärme in amorphen Festkörpern führt.

Wärmeleitfähigkeit

In derselben Arbeit diskutieren Zeller und Pohl auch Messungen der Wärmeleitfähigkeit von amorphem und kristallinem Quarz. Abbildung 2.9 zeigt die Wärmeleitung dieser stöchiometrisch identischen Festkörper in Abhängigkeit von der Temperatur. Auch hier zeigt sich ein fundamental unterschiedliches Verhalten. Zum einen ist der Absolutwert der Wärmeleitfähigkeit beim kristallinen Vertreter um eine bis fünf Größenordnungen höher als beim amorphen, zum anderen steigt sie beim Glas im gesamten Temperaturverlauf stetig an, wohingegen beim Kristall ein ausgeprägtes Maximum bei etwa 10 K zu erkennen ist. Wieder lässt sich mit Hilfe des Debye-Modells

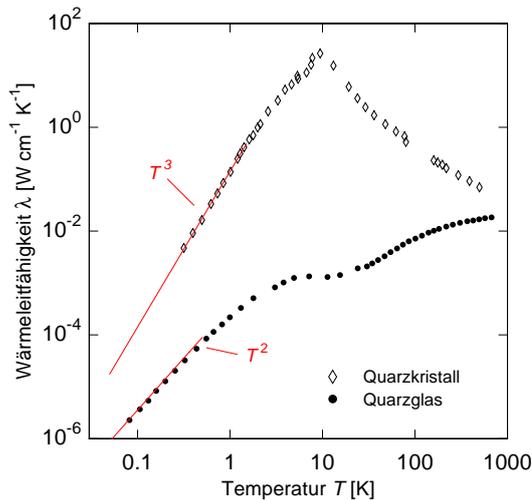


Abb. 2.9: Wärmeleitfähigkeit λ von amorphem und kristallinem Quarz als Funktion der Temperatur. Man erkennt eine T^2 -Abhängigkeit für das Glas und eine T^3 -Abhängigkeit für den Kristall. [Hun77].

der charakteristische Verlauf der Wärmeleitfähigkeit des Kristalls mit der Temperatur erklären.

Bei der Diskussion der Wärmeleitfähigkeit wollen wir annehmen, dass sich die Gitterschwingungen als einzige Träger der Wärme wie ein Phononengas behandeln und somit analog zur kinetischen Gastheorie berechnen lassen. Somit ergibt sich für tiefe Temperaturen eine Wärmeleitfähigkeit $\lambda = \frac{1}{3} C v_D d \propto T^3$. In Kristallen wird angenommen, dass die freie Weglänge l der Phononen bei sehr niedrigen Temperaturen nur von der Probengeometrie $d = \text{konst.}$ begrenzt wird. Mit der Einführung eines effektiven Phononenzweiges und linearer Dispersion kann deren Ausbreitungsgeschwindigkeit v_D als konstant angesehen werden. Mit der spezifischen Wärme $C \propto T^3$ ergibt sich eine kubische Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen, welche durch die Messdaten des Kristalls in Abbildung 2.9 eindrucksvoll bestätigt wird.

Auch das Maximum und die anschließende Reduktion bei weiter steigender Temperatur kann mit Phonon-Phonon-Streuung und Umklapp-Prozessen erklärt werden. Für das amorphe SiO_2 steigt die Wärmeleitfähigkeit unter einem Kelvin allerdings quadratisch mit der Temperatur und hat einen viel geringeren Absolutwert. Dies deutet darauf hin, dass es in amorphen Festkörpern niederenergetische Anregungszustände geben muss, die als Streuzentren die mittlere freie Weglänge l der Phononen reduzieren.

Ultraschallabsorption

Ultraschallabsorptionsexperimente von Hunklinger und Arnold an dem Borsilikatglas BK 7 erbrachten 1972 den Nachweis, dass diese niederenergetischen Anregungszustände Zwei-Niveau-Charakter besitzen [Hun74]. Abbildung 2.10 zeigt die Ultraschall-

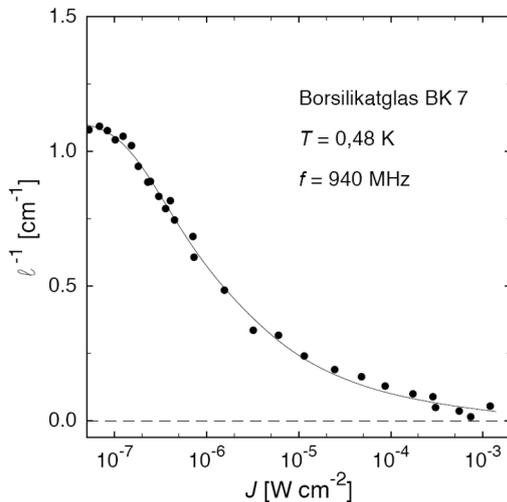


Abb. 2.10: Ultraschalldämpfung in Borsilikatglas BK 7. Aufgetragen ist die inverse mittlere freie Weglänge l^{-1} in Abhängigkeit von der eingestrahnten Intensität J bei 480 mK. [Hun74].

Dämpfung von Borsilikatglas (BK 7) bei 0,48 K in Abhängigkeit von der eingestrahnten Intensität. Gezeigt ist die inverse mittlere freie Weglänge der Ultraschallwelle. Mit steigender Intensität der Ultraschallwelle verringert sich die inverse mittlere freie Weglänge, bis sie schließlich verschwindet. Erklärt werden kann diese Beobachtung mit der resonanten Wechselwirkung der Phononen mit niederenergetischen Zwei-Niveau-Systemen.

Die Besetzungszahldifferenz ΔN zwischen Grund- und angeregtem Niveau eines Ensembles von Zwei-Niveau-Systemen im thermodynamischen Gleichgewicht ist

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

wobei N die Zahl der Zwei-Niveau-Systeme mit Energieaufspaltung E , k_{B} die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur ist. Bei hinreichend kleiner Intensität wird die

Ultraschallwelle auf Grund von resonanter Absorption gedämpft. Mit steigender Intensität gelangen immer mehr Systeme vom Grund- in den angeregten Zustand, bis beide Niveaus gleichstark bevölkert sind und stimulierte Emission und resonante Absorption annähernd gleich wahrscheinlich werden.

2.3 Tunnelsysteme in amorphen Festkörpern

Die physikalischen Eigenschaften amorpher Festkörper, welche von denen kristalliner Festkörper abweichen, bedurften einer Erklärung, welche 1972 mit dem Standardtunnelmodell von Anderson *et al.* [And72] und Phillips [Phi72] unabhängig voneinander erbracht wurde. Das Standardtunnelmodell ist ein phänomenologischer Ansatz, welches aus der Idee der bereits erwähnten niederenergetischen Zwei-Niveau-Systeme konzipiert wurde. Mit Hilfe dieses Modells lassen sich die gemachten Beobachtungen der erhöhten spezifischen Wärme und der reduzierten Wärmeleitfähigkeit erfolgreich beschreiben. Des weiteren dient es als Grundlage zur Erklärung der im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Messergebnisse. Daher wird es im Folgenden vorgestellt und anschließend seine Voraussagen mit weiteren experimentellen Befunden verglichen.

2.3.1 Standardtunnelmodell

Ein grundlegender Unterschied zwischen zwei stöchiometrisch identischen Materialien von denen eins in kristalliner und eins in amorpher Konfiguration vorliegt, ist die Unordnung, welche nur im amorphen Zustand vorhanden ist. Abbildung 2.11 zeigt beispielhaft eine zweidimensionale Skizze beider Konfigurationen. In der linken Hälfte ist eine kristalline Struktur zu sehen, welche sich durch perfekte Periodizität auszeichnet. Somit ergibt sich dank der Translationssymmetrie aus der Nah- die Fernordnung. Die in der rechten Hälfte von Abbildung 2.11 skizzierte amorphe Struktur ist aus den gleichen Bestandteilen aufgebaut wie die zuvor beschriebene. Eine gewisse Nahordnung ist auch vorhanden. Allerdings gibt es Abweichungen der Bindungswinkel und -längen, welche zu einem Verlust der Fernordnung führen. Wie in der Abbildung an den (mit A und B) markierten Stellen zu sehen ist, gibt es für einzelne Atome oder Atomgruppen energetisch nahezu entartete Gleichgewichtslagen. Für amorphe Festkörper kann davon ausgegangen werden, dass es sich dabei um zwei Gleichgewichtslagen handelt zwischen denen sich die Atome wechseln können [Ens05], was, wie im Folgenden dargestellt, zur Ausbildung von Zwei-Niveau-Systemen führt.

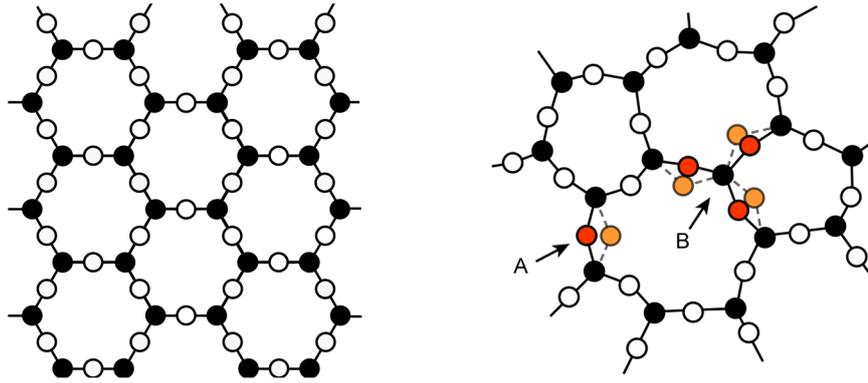


Abb. 2.11: Zweidimensionale Skizze einer kristallinen (links) und einer amorphen Konfiguration (rechts). Die kristalline Struktur besitzt Nah- und Fernordnung, während man bei der amorphen Struktur auf Grund ihrer Unordnung an den Stellen A und B energetisch nahezu entartete Gleichgewichtslagen für einzelne Atome oder Atomgruppen vorfindet. Nach [Zac32].

2.3.2 Zwei-Niveau-Systeme im Doppelmuldenpotential

Diese Atome oder Atomgruppen können als Teilchen mit der effektiven Masse m beschrieben werden, die sich mit Hilfe quantenmechanischen Tunnels in einem Doppelmuldenpotential bewegen, da bei tiefen Temperaturen thermisch aktiviertes Überwinden der Potentialbarriere ausgeschlossen ist. Das Doppelmuldenpotential

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

wird durch zwei benachbarte harmonische Teilpotentiale gebildet, die durch eine Potentialbarriere V voneinander getrennt sind, wie in Abbildung 2.12 dargestellt ist. Die Steilheit der Potentialwände wird mit dem Parameter γ beschrieben. Eine mögliche Energiedifferenz der beiden Potentialmulden Δ wird in diesem Modell mit Asymmetrieenergie bezeichnet. Der Abstand im Konfigurationsraum zwischen den Potentialminima wird mit d angegeben.

Mit Hilfe der Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung

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

mit dem Hamilton-Operator

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

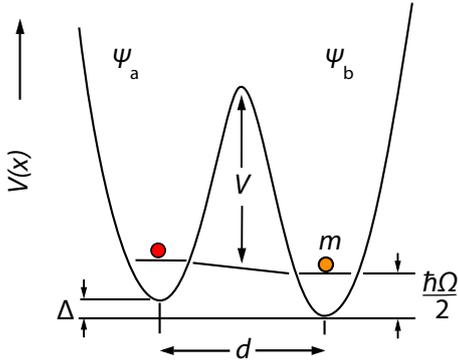


Abb. 2.12: Schematische Darstellung eines Teilchens der effektiven Masse m im Doppelmuldenpotential. Das Doppelmuldenpotential ergibt sich aus der Überlagerung zweier harmonischer Einzelpotentiale. Diese Einzelpotentiale mit Grundzustandsenergie $\frac{\hbar\Omega}{2}$ unterscheiden sich um die Asymmetrieenergie Δ und sind durch eine Potentialbarriere V um einen Abstand d im Konfigurationsraum voneinander getrennt.

und dem Potential aus (2.2) lassen sich die Energie-Eigenwerte bestimmen. Für das Potential (2.2) lässt sich die Lösung stark vereinfachen, wenn man die beiden harmonischen Potentialhälften mit den bekannten Grundzustandswellenfunktionen ψ_a und ψ_b zunächst unabhängig von einander betrachtet. Nähert man nun die beiden getrennten Teilpotentiale immer weiter einander an, so beginnen sie sich zu überlappen und man kann mit Hilfe des Ansatzes

$$\psi(x) = a\psi_a(x) + b\psi_b(x) \quad (2.5)$$

die Wellenfunktion des Gesamtsystems annähern, wobei a und b reelle Koeffizienten sind.

Bei tiefen Temperaturen ist die Besetzungswahrscheinlichkeit der angeregten Zustände verschwindend gering, weshalb nur die Grundzustände des harmonischen Potentials besetzt sind. Für die Energieeigenwerte des Gesamtsystems kann

$$E = \frac{\int \psi^* H \psi d^3x}{\int \psi^* \psi d^3x} = \frac{a^2 H_{aa} + b^2 H_{bb} + 2ab H_{ab}}{a^2 + b^2 + 2abS} \quad (2.6)$$

angesetzt werden. Hierbei werden die Eigenwerte in den einzelnen Mulden mit $H_{aa} = \int \psi_a^* H \psi_a d^3x$ und $H_{bb} = \int \psi_b^* H \psi_b d^3x$ bezeichnet. Der Überlapp der Wellenfunktion wird mit $S = \int \psi_a^* \psi_b d^3x$ beschrieben und $H_{ab} = \int \psi_a^* H \psi_b d^3x$ beschreibt den Energieaustausch, welcher von der Potentialhöhe V , der Teilchenmasse m und besonders dem Abstand d der Teilpotentiale abhängt [Ens05]. Berücksichtigt man noch, dass die tatsächlichen Eigenwerte stets kleiner als die genähert angesetzten sind, berechnen sich diese mit Hilfe eines Variationsverfahrens nach einer Minimierung zu

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left(\hbar\Omega \pm \sqrt{\Delta^2 + 4H_{ab}^2} \right) . \quad (2.7)$$

Mit Hilfe der Störungstheorie 1. Ordnung lässt sich die in (2.7) auftretende Wechselwirkungsenergie H_{ab} näherungsweise zu

$$-2H_{ab} = \Delta_0 \approx \hbar\Omega e^{-\lambda} \quad (2.8)$$

berechnen. Die Größe Δ_0 wird Tunnelaufspaltung genannt, da sie bei symmetrischen Doppelmuldenpotentialen (bei denen $\Delta = 0$ gilt) die Energieaufspaltung der Eigenwerte angibt. Der auftretende Tunnelparameter λ lässt sich mit der WKB-Methode näherungsweise berechnen

$$\lambda \approx \frac{d}{2\hbar} \sqrt{2mV} \quad (2.9)$$

und enthält die Potentialform charakterisierende Parameter, sowie die Masse des darin tunnelnden Teilchens.

Mit Hilfe von (2.8) lässt sich nun unmittelbar die Energiedifferenz

$$E = E_+ - E_- = \sqrt{\Delta^2 + 4H_{ab}^2} = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2} \quad (2.10)$$

des aufgespaltenen Grundzustands angeben.

Zu den Energieeigenwerten $E_{\pm} = 1/2(\hbar\Omega \pm \sqrt{\Delta^2 + (\Delta_0(\lambda))^2})$ gehören die symmetrische ψ_+ und antisymmetrische ψ_- Wellenfunktion

$$\psi_+(x) = \psi_a(x) \cos(\vartheta) + \psi_b(x) \sin \vartheta \quad (2.11a)$$

$$\psi_-(x) = -\psi_a(x) \sin(\vartheta) + \psi_b(x) \cos \vartheta \quad (2.11b)$$

mit $\tan 2\vartheta = \Delta_0/\Delta$. Abbildung 2.13 zeigt die symmetrische und die antisymmetrische Wellenfunktion im Doppelmuldenpotential welche das untere und obere Niveau darstellen, woraus sich die Energieaufspaltung E des Grundzustands ergibt.

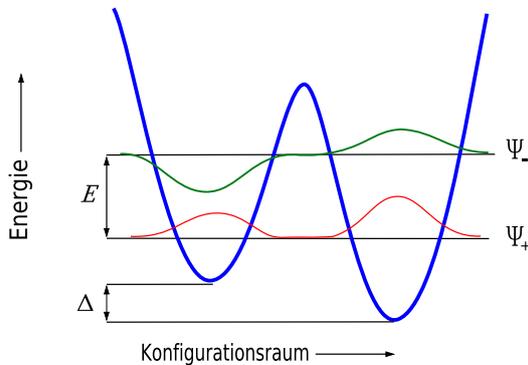


Abb. 2.13: Schematische Darstellung eines Doppelmuldenpotentials mit den Wellenfunktionen der beiden untersten Zustände. Aus [Luc11].

2.3.3 Verteilungsfunktion und Zustandsdichte

Wie im vorangegangenen Abschnitt gezeigt, können die Tunnelsysteme durch zwei Parameter charakterisiert werden, die Asymmetrieenergie Δ und den Tunnelparameter λ . Wie die Verteilung dieser Parameter im amorphen Festkörper aussieht, ist zunächst unbekannt. Es ist allerdings plausibel anzunehmen, dass beide auf Grund der unregelmäßigen Glasstruktur jeweils sehr unterschiedliche Werte annehmen. Im

Standardtunnelmodell wird aus diesem Grund die Annahme gemacht, dass beide Parameter unabhängig von einander und gleichverteilt sind. Somit wird für die Verteilungsfunktion

$$P(\Delta, \lambda) d\Delta d\lambda = \bar{P} d\Delta d\lambda \quad (2.12)$$

angesetzt, wobei \bar{P} eine materialabhängige Konstante ist, deren Wert experimentell bestimmt werden kann. Diese Annahme ist erst einmal willkürlich und wird erst im Nachhinein durch experimentelle Ergebnisse gerechtfertigt.

Anhand einer Variablentransformation ist es möglich, die Verteilungsfunktion P auch in Abhängigkeit von der Energieaufspaltung E und Δ_0 auszudrücken, was eine dem Experiment nähere Darstellungsform ist. Durch Substituieren von Δ durch $E(\Delta, \Delta_0)$ aus (2.10) und λ durch $\Delta_0(\lambda)$ (2.8) erhält man

$$P(E, \Delta_0) dE d\Delta_0 = \bar{P} \frac{E}{\Delta_0 \sqrt{E^2 - \Delta_0^2}} dE d\Delta_0 . \quad (2.13)$$

Abbildung 2.14 zeigt die Verteilungsfunktion aus (2.13) in Abhängigkeit von der Tunnelaufspaltung Δ_0 bei einer festen Energieaufspaltung. Diese divergiert für $\Delta_0 = 0$ und $\Delta_0 = E$. Während die Singularität bei $\Delta_0 = E$ integrierbar ist, muss die Verteilungsfunktion für $\Delta_0 \rightarrow 0$ angepasst werden, um sie integrierbar zu machen. Häufig wird eine minimale Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$ eingeführt, die einem maximalen Tunnelparameter λ_{\max} entspricht. Dies ist berechtigt, da es nur eine endliche Anzahl von Tunnelsystemen in einem Glas gibt¹. Unterhalb von $\Delta_{0,\min}$ wird die Verteilungsfunktion gleich null gesetzt, was somit gleichzeitig auch eine untere Schranke für die Energieaufspaltung $E = \sqrt{\Delta^2 + \Delta_0^2}$ darstellt.

Die Zustandsdichte der Tunnelsysteme $D(E)$ erhält man durch Integration über alle möglichen Tunnelaufspaltungen Δ_0

$$D(E) = \int_{\Delta_{0,\min}}^E P(E, \Delta_0) d\Delta_0 = \bar{P} \ln\left(\frac{2E}{\Delta_{0,\min}}\right) . \quad (2.14)$$

Nimmt man die von der Energie logarithmisch abhängende Zustandsdichte als konstant an, ergibt sich daraus mit Hilfe der Besetzungszahl die lineare Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme im Quarzglas und dessen T^2 -Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit.

2.3.4 Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit elastischen Feldern

Die in dieser Arbeit zur Untersuchung der Tieftemperatureigenschaften amorpher Festkörper angewandte Messmethode benutzt elastische Verzerrungsfelder, welche

¹Aus Wärmekapazitätsmessungen erhält man eine Anzahldichte von etwa $10^{17} - 10^{18}$ Tunnelsystemen pro cm^3 [Ste76].

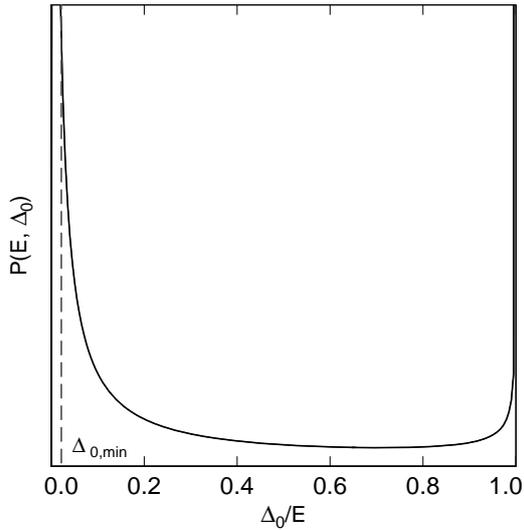


Abb. 2.14: Verteilungsfunktion der Parameter $P(E, \Delta_0)$ aus Gleichung (2.13), als Funktion von Δ_0/E .

mit den im Glas befindlichen Tunnelsystemen wechselwirken können. Werden die angelegten Verzerrungen zu groß, kommt es zu nicht-linearen Effekten, was bedeutet, dass die gemessene Auslenkung nicht mehr linear von der Amplitude des Störfeldes abhängt (siehe hierzu Abschnitt 4.1.3). Sind die Verzerrungsfelder hinreichend klein, kann, wie im Folgenden geschehen, ihr Einfluss auf die Tunnelsysteme als kleine Störung betrachtet werden.

Die Verzerrungsfelder wirken sich prinzipiell auf beide die Tunnelsysteme charakterisierenden Parameter, Tunnelaufspaltung Δ_0 und Asymmetrieenergie Δ , aus. Formal lässt sich dies durch einen Störhamiltonian H_S ausdrücken. Ohne Störung lautet der Hamiltonian des Systems

$$H_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

in der Basis der Ein-Mulden-Potentiale ψ_a und ψ_b . In der Basis der Energieeigenzustände ψ_+ und ψ_- wird dieser diagonal,

$$\tilde{H}_0 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix}, \quad (2.16)$$

mit E aus (2.10). Eine von außen einwirkende Störung bewirkt nun eine Änderung der Tunnelaufspaltung $\delta\Delta_0$ und Asymmetrieenergie $\delta\Delta$. Da der Überlapp der Wellenfunktionen ψ_a und ψ_b als sehr klein angenommen wurde, ist die Änderung der Tunnelaufspaltung $\delta\Delta_0$ viel kleiner als die Änderung der Asymmetrieenergie $\delta\Delta$ ist und diese so in guter Näherung vernachlässigt werden kann [Phi84]. Die vom Verzerrungsfeld hervorgerufene Veränderung der Umgebung der Tunnelsysteme führt allerdings unmittelbar zu einer Änderung der Asymmetrieenergie, weshalb sich als

Störhamiltonian

$$H_S = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & -\delta\Delta_0 \\ -\delta\Delta_0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} \approx \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta\Delta & 0 \\ 0 & -\delta\Delta \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

ergibt. Für kleine Störungen ist die Kopplung des Verzerrungsfeldes an die Asymmetrieenergie in linearer Näherung

$$\delta\Delta = 2\gamma\tilde{e}, \quad (2.18)$$

wobei das Deformationspotential γ ein Maß für die Stärke der Kopplung zwischen Tunnelsystemen und Phononen ist und \tilde{e} für das Verzerrungsfeld steht. Somit ergibt sich für den Gesamthamiltonian H in der Basis der Energieeigenzustände

$$\tilde{H} = \tilde{H}_0 + \tilde{H}_S = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} + \frac{\gamma\tilde{e}}{E} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix}. \quad (2.19)$$

Die Diagonalelemente sind ein Maß für die Änderung der Energieaufspaltung E durch die Störung, während die Außerdiagonalelemente Übergänge innerhalb des Zwei-Niveau-Systems beschreiben.

Es soll noch erwähnt werden, dass es möglich ist die Dynamik der Tunnelsysteme mit Hilfe von Bloch-Gleichungen zu beschreiben [Hun76], da sich diese als quantenmechanische Zwei-Niveau-Systeme formal wie Spin- $1/2$ -Teilchen verhalten. Im Folgenden wird jedoch auf die vorhandenen Resonanz- und Relaxationsterme getrennt eingegangen, welche die Temperaturabhängigkeit der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ und der inneren Reibung Q^{-1} bestimmen.

Relaxationsprozesse

Das von einer Schallwelle hervorgerufene Verzerrungsfeld \tilde{e} bewirkt in einem Tunnelsystem mit Energieaufspaltung E und Asymmetrie Δ nach (2.19) eine Modulation der Energieaufspaltung

$$\delta E = 2\gamma\tilde{e}\frac{\Delta}{E}. \quad (2.20)$$

Diese Modulation führt dazu, dass dieses Ensemble von Tunnelsystemen aus dem thermischen Gleichgewicht gebracht wird, da die Besetzung der Energieniveaus (2.1) von der Energieaufspaltung abhängt. Variiert das äußere Verzerrungsfeld, beispielsweise periodisch, so führt dies zu einer permanenten Änderung des Gleichgewichts, da die Energieaufspaltung über die Asymmetrie von der Verzerrung abhängt. Diese Situation ist in Abbildung 2.15 skizziert. Über den Austausch von Energie mit dem Wärmebad versucht das Ensemble das momentane thermische Gleichgewicht wieder herzustellen. Diese Relaxation geschieht über Absorption und Emission von Phononen in einer charakteristischen Zeit τ . Da diese Relaxationszeit τ endlich ist

kommt es zu einer Phasenverschiebung, wie man anhand der unterschiedlichen Phasen in Abbildung 2.15 sieht, zwischen der Verzerrung \tilde{e} auf Grund des äußeren Feldes und der elastischen Spannung σ . Die elastische Spannung σ entsteht in einem Festkörper, wenn auf diesen eine äußere Kraft wirkt. Der Zusammenhang zwischen der Verzerrung und der elastischen Spannung ist die elastische Suszeptibilität S , die üblicherweise „elastische Nachgiebigkeit“ genannt wird.

Berücksichtigen wir nur die von der Verzerrung verursachte Spannung, so ergibt sich

$$\sigma = S\tilde{e}, \quad (2.21)$$

mit der komplexwertigen frequenzabhängigen elastischen Suszeptibilität $S = S' + iS''$. Für die durch Tunnelsysteme hervorgerufene elastische Spannung und Relaxationszeit τ ergibt sich nun folgender Relaxationsansatz

$$-\frac{\partial\sigma}{\partial t} = \frac{\sigma}{\tau}. \quad (2.22)$$

Setzt man (2.21) in den Relaxationsansatz ein, erhält man mit der statischen elastischen Suszeptibilität \hat{S}

$$-\frac{\partial\sigma}{\partial t} = \frac{\hat{S}\tilde{e}}{\tau}. \quad (2.23)$$

Gehen wir von einem periodisch oszillierenden Verzerrungsfeld $\tilde{e} = \tilde{e}_0 e^{-i\omega t}$ aus, so gilt entsprechend (2.21)

$$\sigma = S\tilde{e}_0 e^{-i\omega t}. \quad (2.24)$$

Setzen wir dies in (2.22) ein, so erhalten wir für die elastische Suszeptibilität

$$S = \frac{\hat{S}}{1 - i\omega\tau}. \quad (2.25)$$

Mit Hilfe von (2.21) und der Besetzungszahldifferenz für Zwei-Niveau-Systeme (2.1) erhält man für die statische elastische Suszeptibilität

$$\hat{S} = \frac{\partial(\sigma)}{\partial(\Delta N)} \frac{\partial(\Delta N)}{\partial E} \frac{\partial E}{\partial \tilde{e}}, \quad (2.26)$$

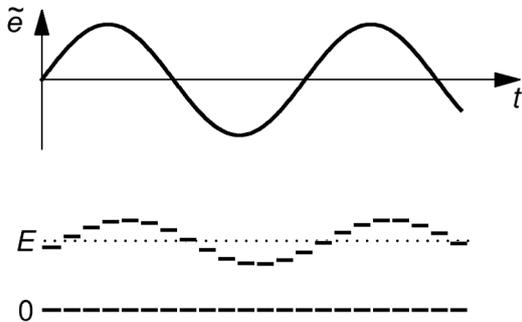


Abb. 2.15: Schematische Darstellung des Einflusses eines äußeren Verzerrungsfeldes auf die Energieaufspaltung der Tunnelsysteme. Auf Grund der endlichen Relaxationszeit kommt es zu einer Phasenverschiebung.

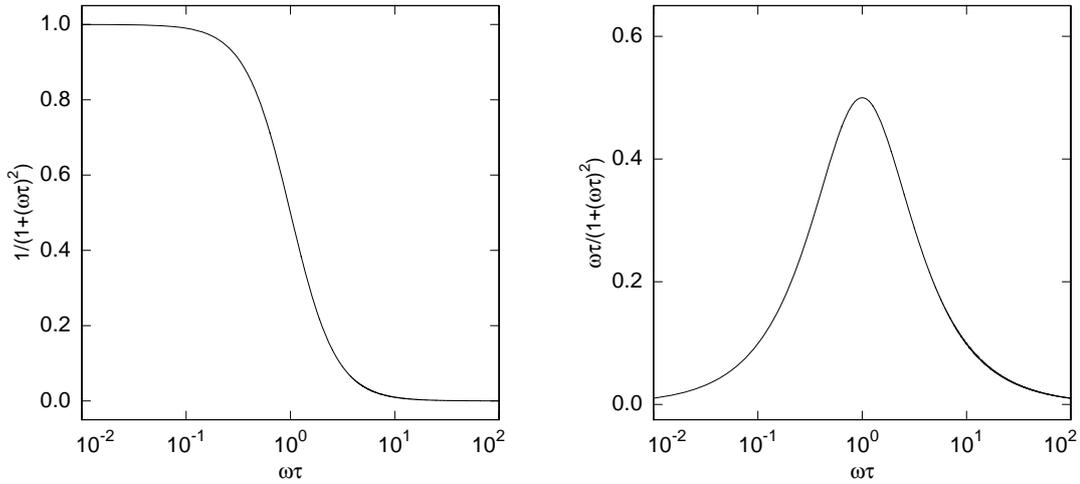


Abb. 2.16: Frequenzgang eines Debye-Relaxators mit Realteil (links) und Imaginärteil (rechts).

was letztlich mit (2.20) und (2.25)

$$S = \frac{2N\gamma^2}{\rho^2 v^4} \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{\operatorname{sech}^2\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right)}{2k_{\text{B}}T} \frac{1}{1 - i\omega\tau}, \quad (2.27)$$

ergibt, wobei ρ hier für die Dichte des Mediums und v für die Schallgeschwindigkeit steht. Die elastische Suszeptibilität hat die typische Form eines Debyeschen Relaxators [Deb12]. Die komplexe elastische Suszeptibilität lässt sich in Real- und Imaginärteil aufteilen. Der Realteil S' ist mit der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung

$$\frac{\delta v}{v} = -\frac{\rho v^2}{2} S' = -\frac{N\gamma^2}{\rho v^2} \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{\operatorname{sech}^2\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right)}{2k_{\text{B}}T} \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2} \quad (2.28)$$

verknüpft und ihr Imaginärteil S'' mit der inneren Reibung

$$Q^{-1} = \rho v^2 S'' = \frac{2N\gamma^2}{\rho v^2} \left(\frac{\Delta}{E} \right)^2 \frac{\operatorname{sech}^2\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right)}{2k_{\text{B}}T} \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}. \quad (2.29)$$

Abbildung 2.16 zeigt den Real- und Imaginärteil des Frequenzgangs eines Debyeschen Relaxators in Abhängigkeit vom Produkt aus Kreisfrequenz und Relaxationszeit. Der Realteil entspricht hierbei energiespeichernden und der Imaginärteil dissipativen Prozessen. Sind die Frequenzen des Verzerrungsfeldes gering oder die Relaxationszeit des Tunnelsystems niedrig, also $\omega\tau \ll 1$, können die Tunnelsysteme dem Feld praktisch instantan folgen und die Phasenverschiebung ist null. Der Verlust auf Grund von Energiedissipation ist deshalb null und der Realteil hat einen konstanten Wert.

Nimmt die Relaxationszeit zu, beziehungsweise steigt die Frequenz an, können nicht mehr alle Tunnelsysteme dem Feld folgen und es kommt zu einer Phasenverschiebung und Verlusten, während sich der Realteil verringert. Sind die Anregungsfrequenz und die Relaxationsrate etwa in der gleichen Größenordnung, $\omega\tau \approx 1$, sind bei einer Phasenverschiebung von $\phi = \pi/2$ die Änderung des Realteils und die Verluste maximal. Bei noch höheren Frequenzen, $\omega\tau \gg 1$, können die Tunnelsysteme dem Anregungsfeld nicht mehr folgen, sodass ihre Beiträge zu Relaxation beinahe null sind, während die Phasenverschiebung maximal wird ($\phi = \pi$).

Die hier angegebenen Größen beschreiben allerdings nur den Beitrag eines einzelnen Tunnelsystems mit einer Asymmetrie Δ und einer Energieaufspaltung E . Um Aussagen über das Ensemble aller Tunnelsysteme eines Glases treffen zu können, müssen noch die Beiträge aller Tunnelsysteme mit Hilfe der Verteilung (2.13) aufsummiert werden. Man erkennt auf Grund des in 2.28 und 2.29 auftretenden Faktors $(\Delta/E)^2$, dass besonders Tunnelsysteme die stark asymmetrisch sind, das heißt $E \approx \Delta$, einen Beitrag zum Relaxationsanteil liefern.

Relaxationszeiten in der Ein-Phonon-Prozess-Näherung

Der dominante Relaxationsprozesses wird durch die Temperatur bestimmt. Bei hohen Temperaturen kann die Energiebarriere thermisch überwunden werden. Der Temperaturverlauf wird durch ein Arrhenius-Gesetz beschrieben

$$\tau = \tau_0 e^{-E_A/k_B T} . \quad (2.30)$$

Sind die Temperaturen im Bereich einiger Kelvin, so kann die Energiebarriere nicht mehr thermisch überwunden werden und quantenmechanisches Tunneln ist die einzige Bewegungsmöglichkeit der Atome im Doppelmuldenpotential. Ist die Temperatur so niedrig, dass die thermische Energie vergleichbar mit der Energieaufspaltung E des Tunnelsystems ist, also $k_B T \approx E$, so geschieht die Relaxation ins Gleichgewicht durch Absorption oder Emission eines einzelnen Phonons und wird deshalb Ein-Phonon-Prozess oder direkter Prozess genannt. Die Übergangswahrscheinlichkeiten W_{12} und W_{21} zwischen dem Grund- und ersten angeregten Zustand E_- und E_+ , im Folgenden

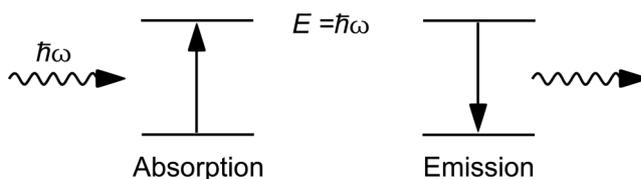


Abb. 2.17: Schematische Darstellung der Ein-Phonon-Prozesse. Übergänge zwischen den Energieniveaus geschehen mit Hilfe eines einzelnen thermischen Phonons.

als Niveau 1 und 2 bezeichnet, kann mit *Fermis Goldener Regel*

$$W_{12} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_2 | \tilde{H}_S | \psi_1 \rangle|^2 D(E) f(E) \delta(\hbar\omega = E), \quad (2.31)$$

berechnet werden, wobei der Störoperator \tilde{H}_S der aus (2.19) bekannte Störhamiltonian ist. Die Bose-Einstein-Verteilung für die Phononen wird hier mit $f(E)$ bezeichnet, während $D(E)$ die Zustandsdichte der Phononen im Debye-Modell

$$D(E) = \frac{E^2}{2\pi^2 \hbar^3 v_\alpha^3} \quad (2.32)$$

bezeichnet. Die Schallgeschwindigkeit der einzelnen Phononzweige ist hier mit v_α gegeben. Die Relaxationsrate des direkten Prozesses τ_d^{-1} ist die Summe der Übergangsraten für Emission und Absorption [Jäc72] und berechnet sich zu

$$\tau^{-1} = W_{12} + W_{21} = W_{12} \left(1 + e^{\frac{E}{k_B T}} \right) \quad (2.33)$$

$$\tau_d^{-1} = \frac{1}{2\pi\rho\hbar^4} \left(\frac{\gamma_l^2}{v_l^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right) E^3 \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (2.34)$$

Die Indizes „l“ und „t“ stehen für den longitudinalen und transversalen Anteil des Deformationspotentials und der Schallgeschwindigkeit. Die Temperaturabhängigkeit steht im Argument des Tangenshyperbolicus, worin sich die thermische Besetzung der Energieniveaus widerspiegelt. Abbildung 2.18 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate für ein symmetrisches, ($\Delta = 0$), und ein asymmetrisches Tunnelsystem, ($\Delta = 3\Delta_0$), durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34). Zusätzlich ist zum

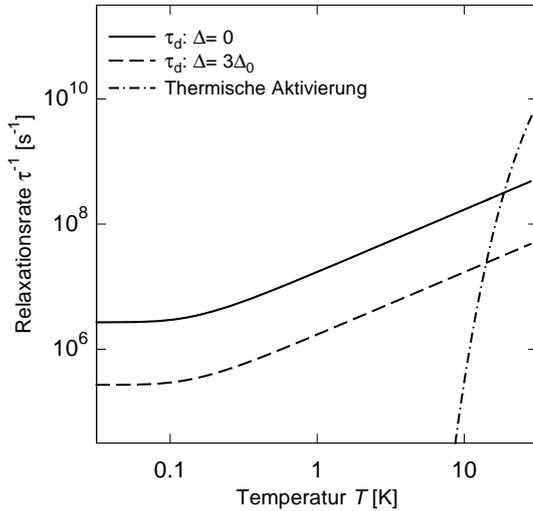


Abb. 2.18: Temperaturabhängigkeit der Relaxationsrate für ein symmetrisches ($\Delta = 0$) und ein asymmetrisches ($\Delta = 3\Delta_0 = 0,3 k_B$ Kelvin) Tunnelsystem gleicher Energieaufspaltung E durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34) und Relaxation mittels thermischer Aktivierung (2.30).

Vergleich auch die Temperaturabhängigkeit der Relaxation mittels thermischer Aktivierung (2.30) eingezeichnet. Man erkennt, dass letztere bei hohen Temperaturen deutlich überwiegt. Nicht eingezeichnet sind Zwei- und Mehr-Phononenprozesse, welche im Bereich weniger Kelvin auftreten.

Resonante Prozesse

Neben der soeben behandelten Relaxation sind es resonante Prozesse wie Absorption und stimulierte Emission, die einen wichtigen Beitrag für die elastischen Eigenschaften bei sehr tiefen Temperaturen liefern.

Stimmt die Energie $E = \hbar\omega$ eines Phonons des anregenden Feldes mit der Energieaufspaltung E eines Tunnelsystems überein, kann es zur resonanten Wechselwirkung kommen. Befindet sich das Tunnelsystem im Grundzustand kommt es, wie man in Abbildung 2.19 erkennt, zur Absorption eines Phonons. Da dessen Energie $\hbar\omega$ gleich der Energieaufspaltung E ist, wechselt das Tunnelsystem in den angeregten Zustand. Ist das Tunnelsystem bereits im angeregten Zustand, so kommt es zur stimulierten Emission eines weiteren Phonons der Energie $E = \hbar\omega$. Eine ausführliche Berechnung findet sich zum Beispiel in [Hun76].

Wie schon zur Berechnung der Relaxationszeiten für den Ein-Phonon-Prozess kann auch hier *Fermis Goldene Regel* für die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten herangezogen werden. Unter Berücksichtigung der natürlichen Linienbreite für den angeregten Zustand, wofür üblicherweise ein Lorentzprofil

$$g(\omega) = \frac{\tau_2}{\pi} \frac{1}{1 + (\omega - \omega_0)^2 \tau_2^2} \quad (2.35)$$

mit der Breite τ_2^{-1} und dem Maximum bei ω_0 gewählt wird, ergibt sich für die innere Reibung

$$Q^{-1} = \frac{N\gamma^2}{\rho v^2} \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 \frac{\pi}{\hbar} g(\omega) \tanh \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (2.36)$$

Die innere Reibung ist proportional zur Besetzungszahldifferenz (2.1) und verschwindet bei hohen Temperaturen, $k_B T \gg E$ verschwindet. Ein merklicher Beitrag zur Absorption wird somit nur erbracht, wenn es einen erkennbaren Unterschied in der Besetzungszahl gibt, da sonst Absorption und stimulierte Emission gleich wahrscheinlich auftreten. Da dieser Unterschied nur für $k_B T \lesssim E$ gegeben ist und unter Berücksichtigung von $E = \hbar\omega$ folgt, dass bei den im Experiment verwendeten Frequenzen von wenigen Kilohertz ein merklicher Betrag zur inneren Reibung erst im nK-Bereich vorläge. Da sich der in dieser Arbeit vermessene Temperaturbereich nicht unter einige mK erstreckt, kann der resonante Anteil zur inneren Reibung vernachlässigt werden

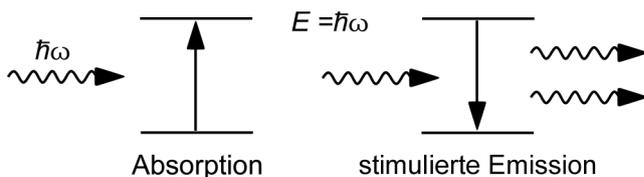


Abb. 2.19: Schematische Darstellung resonanter Prozesse. Absorption und stimulierte Emission eines Phonons, dessen Energie $\hbar\omega$ gleich der Energieaufspaltung E ist.

Zur relativen Schallgeschwindigkeitsänderung tragen auch Tunnelsysteme mit $E \gg \hbar\omega$ bei. Im Limes niedriger Messfrequenzen ergibt sich für die relative Schallgeschwindigkeitsänderung

$$\frac{\delta v}{v} = \frac{N\gamma^2}{\rho v^2} \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2 \frac{1}{E} \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right) \propto N \tanh\left(\frac{E}{2k_{\text{B}}T}\right). \quad (2.37)$$

Demnach spiegelt die Erhöhung der Schallgeschwindigkeit mit der Temperatur die sukzessive Besetzung des angeregten Zustands der Tunnelsysteme mit $E \approx k_{\text{B}}T$ wieder. Man erkennt auf Grund des auftretenden Faktors $(\Delta_0/E)^2$, dass besonders symmetrische Tunnelsysteme ($E \approx \Delta_0$) einen Beitrag zum resonanten Anteil liefern. Wie schon im vorangegangenen Abschnitt, wurde hier nur der Beitrag eines einzelnen Tunnelsystems mit einer Tunnelaufspaltung Δ_0 und einer Energieaufspaltung E betrachtet. Um Aussagen über das Ensemble aller Tunnelsysteme eines Glases treffen zu können, müssen noch die Beiträge aller Tunnelsystem mit Hilfe der Verteilung (2.13) aufsummiert werden.

2.3.5 Wechselwirkung von Tunnelsystemen mit Elektronen

Anders als in dielektrischen Gläsern sind es in metallischen Gläsern nicht nur Phononen, die mit den Tunnelsystemen wechselwirken können, sondern auch die hier vorhandenen Leitungselektronen. Diese Wechselwirkung führt zu einem weiteren Relaxationskanal, welcher zusätzlich von der bereits beschriebenen Relaxation über Phononen ist. Je nach Kopplungsstärke ist diese Relaxation um bis zu vier Größenordnungen größer.

Genau wie die Kopplung der Tunnelsysteme an Phononen, führt auch die Kopplung der Leitungselektronen an die Tunnelsysteme zu einer Änderung der Asymmetrie Δ [Bla81]. Betrachtet man das Doppelmuldenpotential in Abbildung 2.12, sieht man, dass sich das tunnelnde Teilchen an den Gleichgewichtspositionen $\pm d/2$ aufhalten kann, womit seine Verschiebung d beträgt. Dies ist schematisch für zwei verschiedene Tunnelsysteme auch in Abbildung 2.20 gezeigt. Die untere Linie repräsentiert die Konfigurationsachse und die schwarzen Kreise stellen Teilchen dar, welche sich um d_i verschieben können. Auf Grund der Elektron-Tunnelsystem-Wechselwirkung ergibt sich für die Leitungselektronen ein unterschiedliches Potential, abhängig davon, ob sich das tunnelnde Teilchen in der linken oder rechten Mulde befindet, wie in Abbildung 2.20 oben zu sehen ist. Dies führt dazu, dass die Elektronen inelastisch von einem Zustand nahe der Fermikante zum anderen gestreut werden. Formal lässt sich dies durch die Einführung eines weiteren Störhamiltonians

$$\tilde{H}_2 = \frac{1}{N} \sum_{k,k'} [V_{\perp} S_x + V_{\parallel} S_z] c_k^{\dagger} c_{k'} \quad (2.38)$$

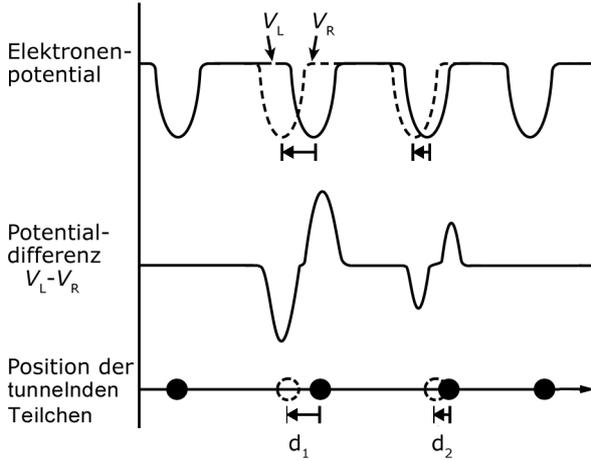


Abb. 2.20: Ursache der Kopplung zwischen Elektronen und Tunneln. Die Verschiebung des tunnelnden Teilchens um d_i , ändert das Potential der Elektronen von V_L nach V_R , was zu einer resultierenden Potentialdifferenz führt. Nach [Bla81].

ausdrücken [Bla78]. Hierbei wird die Anzahl der tunnelnden Teilchen mit N beschrieben und die Operatoren $c_k^\dagger c_{k'}$ stehen für die Impulsänderung der Elektronen auf Grund der inelastischen Streuung. Die Diagonal- und Außerdiagonalelemente sind durch $V_{\parallel} = \xi_e \Delta / E$ und $V_{\perp} = \xi_e \Delta_0 / E$ gegeben, wobei ξ_e die Stärke der Wechselwirkung zwischen Elektronen und Tunneln beschreibt, wie das Deformationspotential γ ein Maß für die Stärke der Kopplung zwischen Tunneln und Phononen ist [vL81]. Zusammen mit dem ungestörten Hamiltonian \tilde{H}_0 und der Störung durch Phononen \tilde{H}_S aus (2.19) ergibt sich in Matrixschreibweise somit für den Gesamthamiltonian

$$\tilde{H}_{ges} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E & 0 \\ 0 & -E \end{pmatrix} + \frac{\gamma \tilde{e}}{E} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} + \frac{1}{2N} \sum_{k,k'} \frac{\xi_e}{E} \begin{pmatrix} \Delta & -\Delta_0 \\ -\Delta_0 & -\Delta \end{pmatrix} c_k^\dagger c_{k'}. \quad (2.39)$$

Wie schon bei \tilde{H}_S beschreiben die Außerdiagonalelemente den Übergang zwischen dem Grund- und angeregten Niveau, begleitet von einem Übergang der beteiligten Elektronen von k' zu k .

Dies bietet den Tunneln einen weiteren Relaxationskanal, neben dem über Phononen. Golding *et al.* fanden 1978 mit Störungstheorie zweiter Ordnung für den Fall eines normalleitenden metallischen Glases hierfür eine Relaxationsrate

$$\tau_{e,n}^{-1} = \frac{\pi}{4\hbar} K(\xi_e) \left(\frac{\Delta_0}{E} \right)^2 E \coth \left(\frac{E}{2k_B T} \right). \quad (2.40)$$

Hierbei stehen die Indizes „e,n“ für Relaxation auf Grund von Leitungselektronen, welche im normalleitenden metallischen Glas vorhanden sind. Mit $K(\xi_e) = (D_e(E_F) \Omega \xi_e)^2$ wird eine dimensionslose Tunneln-System-Elektron-Kopplungskonstante bezeichnet, in die neben der Zustandsdichte der Elektronen an der Fermi-Kante $D_e(E_F)$ auch das atomare Volumen $\Omega = V/N$ eingeht² [Gol78]. Abbildung 2.21 zeigt die Temperatur-

²In der Literatur findet man auch K_e mit der Einheit $[J^{-1} s^{-1}]$. Mit $K_e = K \cdot \pi/4\hbar$ können sie ineinander konvertiert werden [Ram00].

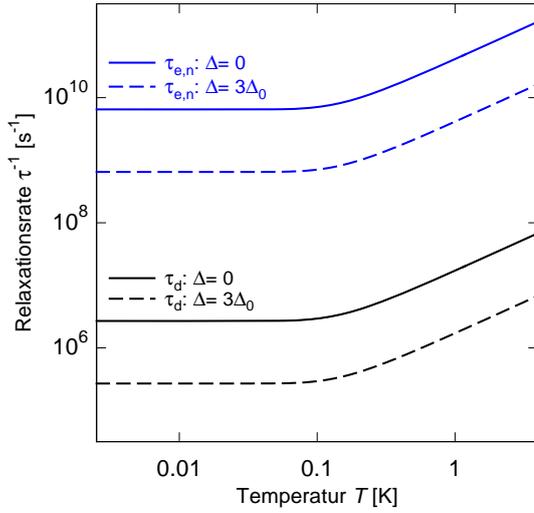


Abb. 2.21: Temperaturabhängigkeit der Relaxationsraten für ein symmetrisches ($\Delta = 0$) und ein asymmetrisches ($\Delta = 3\Delta_0 = 0,3 k_B$ Kelvin) Tunnelsystem gleicher Energieaufspaltung E durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34) und auf Grund von Elektronen (2.40). Letztere können um bis zu vier Größenordnungen überwiegen.

abhängigkeit der Relaxationsraten für jeweils ein symmetrisches ($\Delta = 0$) und ein asymmetrisches ($\Delta = 3\Delta_0$) Tunnelsystem. Neben den Relaxationsraten durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34), die schon in Abbildung 2.18 gezeigt werden, sind jene auf Grund der Elektron-Tunnelsystem-Wechselwirkung eingezeichnet. Diese übersteigen erstere um mehrere Größenordnungen. Der Grund für diese erhebliche Differenz liegt in der hohen Zustandsdichte der Elektronen an der Fermi-Kante $D_e(E_F)$ verglichen mit der kleinen Zustandsdichte der Phononen bei der entsprechenden Energie [Bla81]. Eine Auswirkung der immens erhöhten Relaxation in normalleitenden amorphen Metallen ist, dass es nicht möglich ist, die thermische Besetzung innerhalb eines kleinen Spektralbereiches mit Hilfe eines starken Ultraschallimpulses umzukehren, sogenanntes „hole burning“, und diese Besetzungsinversion anschließend mit einem weiteren schwachen Probestrom zu detektieren [Hun76]. Der Grund ist, dass die thermische Besetzung wegen den kurzen Relaxationszeiten zu schnell wieder hergestellt ist.

Handelt es sich bei dem metallischen Glas um eines, das unterhalb einer kritischen Temperatur T_c in den supraleitenden Zustand übergeht, werden die Elektronen mit weiter sinkender Temperatur nach und nach zu Cooper-Paaren gebunden [Coo56] und stehen dann den Tunnelsystemen nicht mehr als Streupartner zur Verfügung. Gleichzeitig steigt die Energielücke $\Delta_{\text{BCS}}(T)$ und nimmt in der BCS-Theorie für $T \rightarrow 0$ einen Wert von $\Delta_{\text{BCS}}(0) = 1,764 k_B T_c$ an, wobei T_c die materialspezifische kritischen Temperatur ist. Bei dieser Temperatur verschwindet die Energielücke $\Delta_{\text{BCS}}(T_c) = 0$. Abbildung 2.22 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Energielücke $\Delta_{\text{BCS}}(T)$ als Funktion der normierten Temperatur T/T_c , welche mit

$$\frac{1}{N(0)V} = \int_0^{\hbar\omega_D} \tan\left(\frac{\sqrt{E^2 + \Delta_{\text{BCS}}^2(T)}}{2k_B T}\right) \frac{dE}{\sqrt{E^2 + \Delta_{\text{BCS}}^2(T)}} \quad (2.41)$$

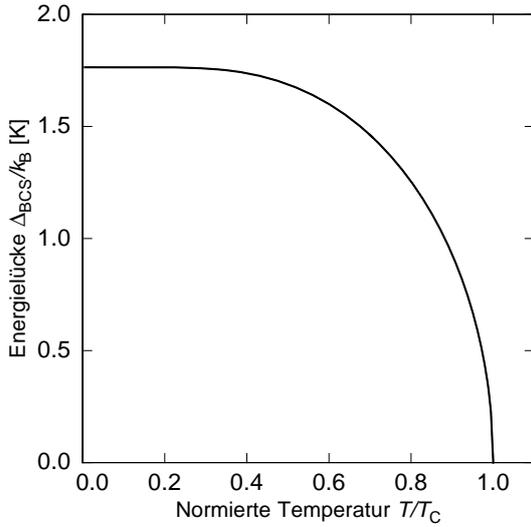


Abb. 2.22: Temperaturabhängigkeit der Energieslücke $\Delta_{\text{BCS}}(T)$ eines Supraleiters.

implizit berechnet werden kann [Bar57]. $N(0)V$ beschreibt das Phonon-Wechselwirkungspotential, welches durch Auswerten bei der kritischen Temperatur T_c mittels

$$\frac{1}{N(0)V} = \int_0^{\hbar\omega_D} \tan\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \frac{dE}{E} \quad (2.42)$$

bestimmt werden kann.

Unterhalb der kritischen Temperatur T_c stehen den Tunnelsystemen mit Energieaufspaltung $E < \Delta_{\text{BCS}}(T)$ zur Relaxation deshalb neben Phononen nur noch thermisch aktivierte Quasiteilchen als Streupartner zur Verfügung. Black und Fulde [Bla79] berechneten die daraus resultierende Relaxationsrate

$$\tau_{e,\text{sc}}^{-1} = \frac{\pi}{\hbar} K(\xi_e) \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2 \frac{k_B T}{1 + e^{\Delta_{\text{BCS}}(T)/k_B T}}, \quad (2.43)$$

wobei die Indizes „e,sc“ für Relaxation auf Grund von Quasiteilchen stehen, welche unterhalb von T_c stark reduziert sind. Die Relaxationsrate ist für zwei verschiedene Tunnelsysteme in Abbildung 2.23 dargestellt. Neben den Relaxationsraten durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34), sind die Relaxationsraten in Abhängigkeit von der Temperatur für jeweils ein symmetrisches ($\Delta = 0$) und ein asymmetrisches ($\Delta = 3\Delta_0$) Tunnelsystem auf Grund der Wechselwirkung mit Elektronen beziehungsweise mit Quasiteilchen dargestellt. Für Tunnelsysteme, deren Energieaufspaltung kleiner als die Energieslücke $E < 2\Delta_{\text{BCS}}(T)$ ist, stehen nur noch Quasiteilchen als Streupartner für die Relaxation zur Verfügung, welche unterhalb der kritischen Temperatur T_c exponentiell aussterben. Die exponentielle Verringerung der Quasiteilchenanzahl zeigt sich durch eine drastische Reduktion der Relaxationsrate unterhalb von T_c , sodass bei niedrigen Temperaturen $T \ll T_c$ die Relaxation wieder durch die Wechselwir-

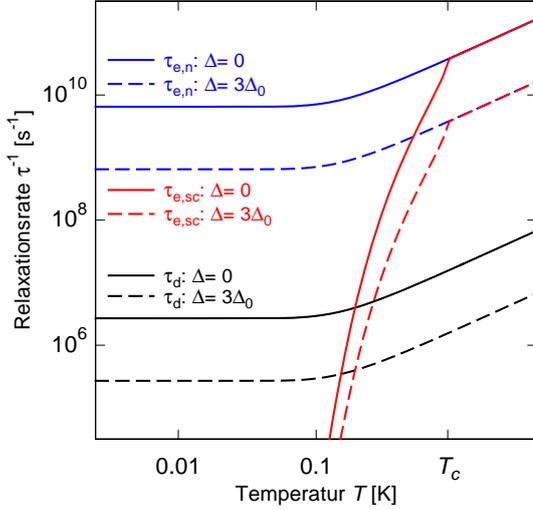


Abb. 2.23: Temperaturabhängigkeit verschiedener Relaxationsraten für jeweils ein symmetrisches ($\Delta = 0$) und ein asymmetrisches ($\Delta = 3\Delta_0 = 0,3 k_B$ Kelvin) Tunnelsystem gleicher Energieaufspaltung E . Neben den bereits in Abbildung 2.21 beschriebenen Relaxationsraten durch den Ein-Phonon-Prozess (2.34) und auf Grund von Elektronen im normalleitenden Zustand (2.40) sind Relaxationsraten für den supraleitenden Fall eingezeichnet. Unterhalb von T_c nimmt die Relaxationsrate rapide mit der Temperatur ab, sodass sie bald von der Relaxationsrate über Phononen übertroffen wird.

kung mit Phononen dominiert wird. Ist die Energieaufspaltung eines Tunnelsystems größer als die doppelte Energielücke ($E \geq 2\Delta_{\text{BCS}}$), können Cooperpaare aufgebrochen werden, wobei je zwei Quasiteilchen entstehen. Dieser Mechanismus kann bei Temperaturen direkt unterhalb von T_c eine starke Zunahme der Relaxationsrate verursachen, welche noch die aus (2.40) überwiegt [Bla81].

Unter der Annahme, dass die Relaxationsprozesse durch Phononen und Elektronen beziehungsweise Quasiteilchen unabhängig voneinander sind, ergibt sich somit für die Gesamtrelaxationsrate

$$\tau_{\text{ges},n}^{-1} = \tau_d^{-1} + \tau_{e,n}^{-1} \quad \text{und} \quad \tau_{\text{ges},sc}^{-1} = \tau_d^{-1} + \tau_{e,sc}^{-1}. \quad (2.44)$$

Alle bereits vorgestellten Relaxationsraten (2.34, 2.40 und 2.43) sind proportional zum Quotienten $(\Delta_0/E)^2$, was bedeutet, dass die Relaxationszeiten aller Tunnelsysteme zwischen einem minimalen τ_{min} und maximalen Wert τ_{max} variieren. Wegen (2.10) relaxieren symmetrische Tunnelsysteme ($\Delta_0/E = 1$), bei identischer Energieaufspaltung E , am schnellsten, was zur Relaxationszeit τ_{min} führt

$$\tau_{d,\text{min}}(E) = \frac{m}{E^3} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \quad \text{wobei} \quad (2.45)$$

$$m = 2\pi\rho\hbar^4 \left(\frac{\gamma_1^2}{v_1^5} + 2\frac{\gamma_t^2}{v_t^5} \right)^{-1}. \quad (2.46)$$

Tunnelsysteme mit wachsender Asymmetrie Δ hingegen relaxieren zunehmend langsamer. Entsprechende minimale Relaxationszeiten gibt es für die Relaxation auf Grund von Elektronen für den supraleitenden Fall (2.43) und normalleitenden Fall (2.40) Fall.

2.3.6 Integration der Beiträge und Vorhersagen des Tunnelmodells

Bisher wurde nur der Beitrag einzelner Tunnelsysteme mit einer Tunnelaufspaltung Δ_0 und einer Energieaufspaltung E betrachtet. Um Aussagen über das Ensemble aller Tunnelsysteme eines Glases treffen zu können, müssen noch die Beiträge aller Tunnelsysteme aufsummiert werden.

Schallgeschwindigkeitsänderung

Dielektrisches Glas Betrachten wir zunächst die Beiträge der Tunnelsysteme zur relativen Schallgeschwindigkeitsänderung auf Grund der Wechselwirkung mit Phononen. Dies entspricht dem Fall eines dielektrischen Glases und dem eines metallischen Glases, welches sich weit unterhalb von T_c im supraleitenden Zustand befindet.

Den Beitrag der resonanten Prozesse erhalten wir, indem unter Berücksichtigung der Verteilungsfunktion (2.13) über den resonanten Beitrag (2.37) integrieren. Wir erhalten

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{res}} = \frac{\overline{P}\gamma^2}{\rho v^2} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} \frac{dE}{E} \tanh\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_{\Delta_{0,\min}}^E \frac{d\Delta_0}{\Delta_0} \frac{\left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2}{\sqrt{1 - \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2}}. \quad (2.47)$$

Das innere Integral über die Tunnelaufspaltung $d\Delta_0$ ist analytisch lösbar und ergibt bei einer einfachen Erweiterung der unteren Integrationsgrenze zu $\Delta_{0,\min} \rightarrow 0$ den Wert eins. Erweitert man bei dem äußeren Integral über die Energieaufspaltung dE zusätzlich die oberen Integrationsgrenze in einer weiteren Näherung zu $E_{\max} \rightarrow \infty$ und bedenkt, dass der größte Beitrag bei resonanten Prozessen von Tunnelsystemen mit $E \simeq k_B T$ kommt, so wird das gesamte Integral (2.47) analytisch lösbar und man erhält

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{res}} \approx +C \ln\left(\frac{T}{T^*}\right), \quad (2.48)$$

wobei T^* eine willkürliche Referenztemperatur ist. Die makroskopische Kopplungskonstante

$$C = \frac{\overline{P}\gamma^2}{\rho v^2} \quad (2.49)$$

enthält das das Deformationspotential γ und die Massendichte ρ des Materials [Jäc76].

Zur Berechnung des Beitrags der Relaxationsprozesse aller Tunnelsysteme zur Schallgeschwindigkeitsänderung muss in (2.50) das Doppelintegral über den Relaxationsbeitrag (2.28) unter Berücksichtigung der Verteilungsfunktion (2.13) gelöst werden. Man erhält

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel}} = \frac{\overline{P}\gamma^2}{\rho v^2} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} \frac{dE}{2k_B T} \operatorname{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_{\Delta_{0,\min}}^E \frac{d\Delta_0}{\Delta_0} \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2} \frac{1}{1 + (\omega\tau)^2}. \quad (2.50)$$

Berücksichtigen wir zunächst nur die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen, wird für die Relaxationszeit in (2.50) die Funktion aus (2.34) eingesetzt $\tau = \tau_d(\Delta_0, E)$. Dieses Integral ist nicht analytisch lösbar, allerdings lässt es sich mit numerischen Methoden berechnen. Alle in dieser Arbeit vorgestellten Vorhersagen, sowohl der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung, als auch der inneren Reibung, sind das Ergebnis solcher numerischer Integrationen³.

Abbildung 2.24 zeigt schematisch die theoretische Vorhersage der Temperaturabhängigkeit beider Beiträge zur Schallgeschwindigkeitsänderung. Als gestrichelte Linie

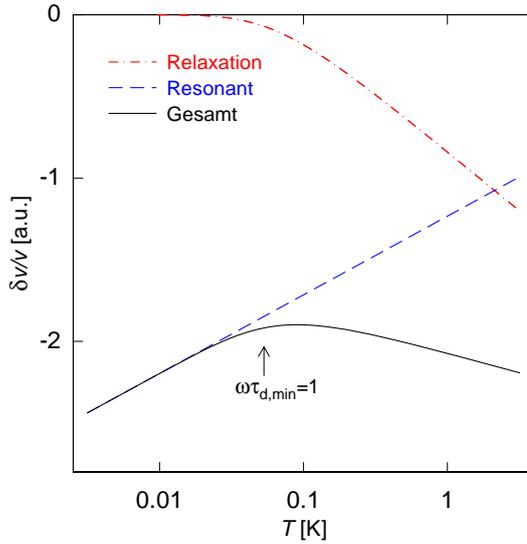


Abb. 2.24: Numerische Berechnung der Schallgeschwindigkeit. Gestrichelt ist der resonante Beitrag eingezeichnet. Der Relaxationsbeitrag wird durch die strichpunktete rote Linie dargestellt. Die Summe beider Beiträge ergibt die relative Schallgeschwindigkeitsänderung, welche ein Maximum knapp oberhalb der Temperatur aufweist, bei der die Relaxationsrate der schnellsten Tunnelsysteme gerade der Frequenz des Verzerrungsfeldes entspricht ($\omega\tau_{d,\min} = 1$).

ist der Beitrag der resonanten Prozesse dargestellt. Er wächst logarithmisch mit steigender Temperatur.

Der Beitrag der Relaxationsprozesse ist in Abbildung 2.24 als strichpunktete Linie dargestellt. Bei niedrigsten Temperaturen ist er vernachlässigbar gering, da die Relaxationszeit $\tau_{d,\min}$ selbst der schnellsten Tunnelsysteme zu groß ist, als dass diese dem äußeren Feld folgen könnten. Mit $\omega\tau_{d,\min} \gg 1$ gilt somit

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel,d}} \approx 0. \quad (2.51)$$

Daraus folgt, dass die Schallgeschwindigkeitsänderung bei niedrigen Temperaturen ausschließlich von resonanten Prozessen bestimmt wird und deshalb logarithmisch ansteigt, was in Abbildung 2.24 anhand der durchgezogenen schwarzen Linie zu erkennen ist, welche den Gesamtbeitrag beider Prozesse darstellt.

Mit steigender Temperatur gibt es immer mehr Tunnelsysteme, die zur Relaxation

³Die numerischen Rechnung wurden mit Hilfe der Software *Mathematica* durchgeführt: Wolfram Research, Inc., Mathematica, Version 8.0, Champaign, IL, USA (2010).

beitragen können, sodass die resonanten Prozesse nicht mehr allein für die Schallgeschwindigkeitsänderung verantwortlich sind. Der Temperaturbereich, ab welchem die Relaxation einen merklichen Einfluss hat, ist in Abbildung 2.24 mit $\omega\tau_{d,\min} = 1$ gekennzeichnet ist. Für noch höhere Temperaturen, wo $\omega\tau_{d,\min} \ll 1$ gilt, ergibt das Integral (2.50)

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel,d}} \approx -\frac{3}{2} C \ln \left(\frac{T}{T^*} \right). \quad (2.52)$$

Da diese Verringerung der Schallgeschwindigkeit die Vergrößerung auf Grund resonanter Prozesse übersteigt, durchläuft die Schallgeschwindigkeit mit steigender Temperatur ein Maximum, bevor sie anschließend, in der halblogarithmischen Darstellung mit der Steigung $-1/2 C$ fällt, wenn sich beide Prozesse bei hohen Temperaturen gemäß

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{res}} + \left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel,d}} \approx -\frac{1}{2} C \ln \left(\frac{T}{T^*} \right) \quad (2.53)$$

überlagern.

Die Temperatur des Maximums in der Schallgeschwindigkeit ist frequenzabhängig. Berücksichtigt man nur die Wechselwirkung mit Phononen und hierbei nur den Ein-Phonon-Prozess, ergibt sich folgender Zusammenhang

$$T_{\max} \propto \left(\frac{m}{k_{\text{B}}^3} \omega \right)^{1/3} \quad (2.54)$$

mit der Konstanten m aus (2.46).

Normalleitendes metallisches Glas Betrachtet man ein metallisches Glas (im normalleitenden Zustand) muss neben der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen, auch die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Elektronen berücksichtigt werden. Für den resonanten Beitrag ergibt sich keine Änderung, da er unabhängig von der Art des Relaxationsmechanismus ist, weshalb weiterhin (2.48) gilt. Für den Relaxationsbeitrag steht den Tunnelsystemen durch die Wechselwirkung mit Elektronen ein weiterer, sehr effizienter Relaxationsmechanismus zur Verfügung, wie bereits in Abschnitt 2.3.5 beschrieben. Daher wird zur Berechnung der Relaxationsrate τ^{-1} im Integral (2.50) die Summe aus der Relaxationsrate des Direkten Prozesses (2.34) und der Relaxationsrate über Elektronen (2.40) gebildet $\tau^{-1} = \tau_{\text{d}}^{-1} + \tau_{\text{e,n}}^{-1}$. Wie schon bei der Relaxation über Phononen, wird dieser Beitrag erst dann merklich von null verschieden, wenn die Relaxationsrate der schnellsten Tunnelsysteme vergleichbar mit der Kreisfrequenz ω des äußeren Wechselfeldes wird ($\omega\tau_{\min} \approx 1$). Auf Grund der um Größenordnung höheren Relaxationsraten in metallischen Gläsern tritt dieser Fall allerdings bereits bei viel tieferen Temperaturen, wenn $\omega\tau_{\text{e,min}} \ll 1$ gilt, ein, als bei reiner Ein-Phonon-Relaxation. Als Ergebnis

erhalten wir [Esq98]

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel,e,n}} \approx -\frac{1}{2} C \ln \left(\frac{T}{T^*} \right). \quad (2.55)$$

Abbildung 2.25 zeigt schematisch die theoretische Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeitsänderung. Gestrichelt ist die Vorhersage für den

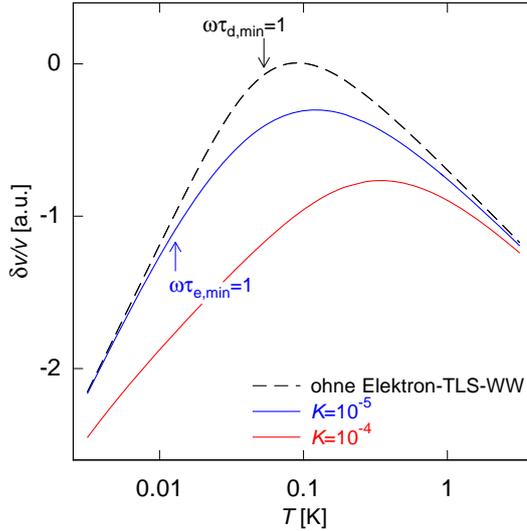


Abb. 2.25: Numerische Berechnung der Schallgeschwindigkeit. Neben dem Fall ohne Tunnelsystem-Elektron-Wechselwirkung, wie er in dielektrischen Gläsern auftritt, ist die Schallgeschwindigkeit für zwei fiktive normalleitende metallische Gläser mit unterschiedlicher Kopplungskonstante dargestellt.

Fall dargestellt, dass ausschließlich der direkte Prozess über Phononen zur Relaxation beiträgt. Wie schon in Abbildung 2.24 ist die Temperatur gekennzeichnet, bei der die Frequenz des äußeren Feldes vergleichbar mit der Relaxationsrate der schnellsten Tunnelsysteme ist ($\omega\tau_{d,\min} = 1$). Unterhalb dieser Temperatur steigt die Schallgeschwindigkeit logarithmisch mit der Temperatur an und erreicht ein Maximum, sobald die Reduktion auf Grund der Relaxation überwiegt. Bei höheren Temperaturen, wenn beide Prozesse wirken fällt die Schallgeschwindigkeit in der halblogarithmischen Darstellung mit der halben Steigung.

Abbildung 2.25 zeigt auch die Ergebnisse der numerischen Berechnung der Schallgeschwindigkeitsänderung für den Fall, dass auch Elektronen zur Wechselwirkung mit Tunnelsystemen beitragen. Farblich gekennzeichnet sind die Schallgeschwindigkeiten für zwei unterschiedliche Kopplungskonstanten exemplarisch dargestellt. Auch bei einer sehr geringen Kopplungsstärke von nur $K = 10^{-5}$ ist die Relaxationsrate der schnellsten Tunnelsysteme bereits bei einer viel tieferen Temperatur mit der Frequenz des Anregungsfeldes vergleichbar ($\omega\tau_{e,\min} = 1$), als im dielektrischen Fall, weshalb die Schallgeschwindigkeit dann nur noch mit halber Steigung anwächst

$$\left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{res}} + \left. \frac{\delta v}{v} \right|_{\text{rel,e}}^{\omega\tau_{e,\min} \ll 1} \approx +\frac{1}{2} C \ln \left(\frac{T}{T^*} \right). \quad (2.56)$$

Für den Fall, dass die Kopplungsstärke größer ist ($K = 10^{-4}$) tritt der Fall $\omega\tau_{e,\min} = 1$ bereits bei einer so niedrigen Temperatur ein, die nicht mehr dargestellt wird. Daher ist der Temperaturbereich, in dem in der halblogarithmischen Darstellung die Steigung gerade $+1/2 C$ ist, besonders gut zu erkennen.

Bei höheren Temperaturen wird der Einfluss der Wechselwirkung über Phononen immer wichtiger, bis er irgendwann so sehr überwiegt, dass die Schallgeschwindigkeit wieder mit derjenigen zusammenläuft, welche ausschließlich von der Wechselwirkung mit Phononen bestimmt wird.

Supraleitendes metallisches Glas Betrachtet man ein metallisches Glas, welches unterhalb einer kritischen Temperatur T_c in den supraleitenden Zustand übergeht, so hängt dessen Variation der Schallgeschwindigkeit stark von T_c ab. Ignoriert man den trivialen Fall, dass die Kopplungskonstante so verschwindend gering ist, dass sich das metallische Glas wie ein dielektrisches verhält, so lassen sich drei verschiedene Fälle unterscheiden. Ist T_c so niedrig, dass es unterhalb der Temperatur liegt, bei der die Relaxation auf Grund von Elektronen einen Beitrag liefert ($T_c < T(\omega\tau_{e,\min} \approx 1)$), so erwartet man ein Verhalten der Schallgeschwindigkeit, wie es im vorherigen Abschnitt beschrieben wird. Der Grund ist, dass die Relaxation die auf Grund der Wechselwirkung mit Elektronen herrührt, in diesem Fall in den normalleitenden Temperaturbereich oberhalb von T_c fällt. Dieses Verhalten ist nicht zu erwarten, da bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten niedrigen Messfrequenzen im einstelligen Kilohertz Bereich $\omega\tau_{e,\min} = 1$ typischerweise bereits bei Temperaturen im Mikrokkelvin-Bereich auftritt.

Ist T_c hingegen so hoch, dass die Relaxation bei T_c bereits beinahe ausschließlich durch die Wechselwirkung mit Phononen dominiert wird, wird erwartet, dass sich die Schallgeschwindigkeit wie die eines dielektrischen Glases verhält.

Beim dritten Fall liegt die Sprungtemperatur im Bereich des Maximums der Schallgeschwindigkeit. Abbildung 2.26 zeigt schematisch die theoretische Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der Schallgeschwindigkeitsänderung für diesen Fall, in dem das Einsetzen der Supraleitung bei einer Temperatur stattfindet, bei welcher die Relaxation durch Elektronen besonders wichtig ist, sodass eine erhebliche Abweichung sowohl zu dielektrischem als auch normalleitendem metallischen Glas zu erwarten ist. Dargestellt sind exemplarisch die Vorhersagen für zwei metallische Gläser mit unterschiedlicher kritischer Temperatur T_c und T'_c und unterschiedlicher Kopplungskonstante K .

Oberhalb von T_c beziehungsweise T'_c , wenn sich das metallische Glas vollständig im normalleitenden Zustand befindet, sind neben den Einflüssen der Phononen die Relaxation auf Grund von Elektronen entscheidend und man erwartet ein Verhalten wie es im vorherigen Abschnitt beschrieben ist. Unterhalb der jeweiligen kritischen

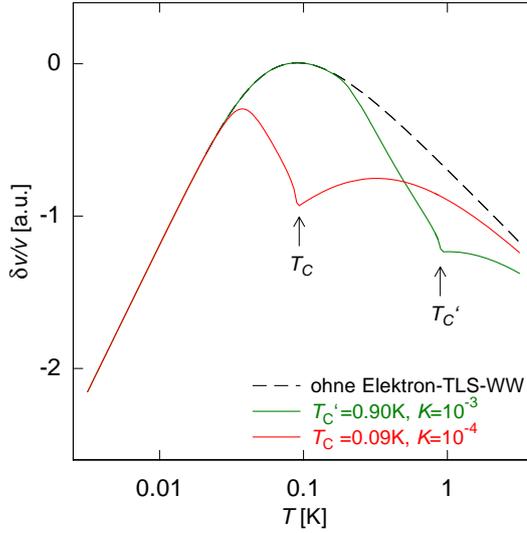


Abb. 2.26: Numerische Berechnung der Schallgeschwindigkeit für zwei supraleitende metallische Gläser mit unterschiedlicher kritischer Temperatur. Die genaue Schallgeschwindigkeitsänderung hängt von der kritischen Temperatur T_c beziehungsweise T_c' , und der Kopplungsstärke K ab.

Temperatur ist die zusätzliche Relaxationsrate drastisch reduziert, da die Elektronen mit sinkender Temperatur exponentiell zu Cooper-Paaren kondensieren und somit nur noch wenige Quasiteilchen als Streupartner der Tunnelsysteme zur Verfügung stehen. Dies führt dazu, dass die Schallgeschwindigkeit schnell den Wert annimmt, den sie im dielektrischen Glas annähme, wie in Abbildung 2.23 ersichtlich.

Das Hauptmerkmal in Abbildung 2.26 ist wie gerade beschrieben, die Veränderung der Schallgeschwindigkeit in der Nähe der jeweiligen kritischen Temperatur T_c . Wie stark der bei dieser Temperatur auftretende „Knick“ letztlich ist, wird durch die Größe der Kopplungskonstante K bestimmt.

Innere Reibung

Dielektrisches Glas Betrachten wir nun die innere Reibung des Glases, welche proportional zum Imaginärteil der elastischen Suszeptibilität ist. Beschränken wir uns zunächst auf den Fall, dass ausschließlich Phononen mit den Tunnelsystemen wechselwirken können. Dies entspricht dem Fall eines dielektrischen Glases und dem eines metallischen Glases, welches sich weit unterhalb von T_c im supraleitenden Zustand befindet.

Für den resonanten Beitrag wird das Integral (2.36) unter Berücksichtigung der Verteilungsfunktion (2.13) gelöst. Bei den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messfrequenzen von wenigen Kilohertz ergibt sich für die innere Reibung [Esq98]

$$Q^{-1} \Big|_{\text{res}} \approx C \frac{\pi}{2} \frac{\hbar\omega}{k_B T}, \quad \hbar\omega \ll k_B T \quad (2.57)$$

was für die verwendeten Frequenzen $\omega \ll k_B T / \hbar$ vernachlässigbar gegenüber dem Relaxationsbeitrag ist. Daher folgt für den Resonanten Beitrag zur Inneren Reibung

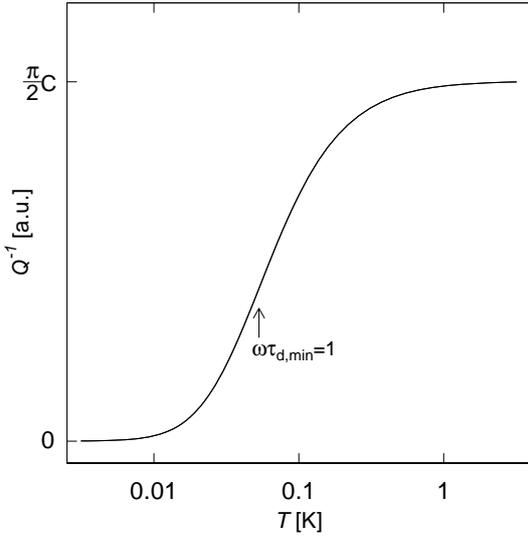


Abb. 2.27: Numerische Berechnung der Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung. Unterhalb der Temperatur, bei der die Relaxationsrate der schnellsten Tunnelsysteme gerade der Kreisfrequenz des Verzerrungsfeldes entspricht, $\omega\tau_{d,\min} \geq 1$, hängt die innere Reibung stark von der Temperatur ab, $Q^{-1} \propto T^3$. Für hohe Temperaturen erwartet man ein temperaturunabhängiges Plateau.

in guter Näherung

$$Q^{-1}|_{\text{res}} \cong 0. \quad (2.58)$$

Zur Berechnung des Beitrags der Relaxationsprozesse aller Tunnelsysteme zur inneren Reibung wird das Doppelintegral (2.59) unter Berücksichtigung der Verteilungsfunktion (2.13) über den Relaxationsbeitrag (2.29) gelöst. Wie schon zur Berechnung der Schallgeschwindigkeit wird zuvor noch der Term $(\Delta/E)^2$ mit Hilfe von (2.10) zu $(1 - (\Delta_0/E)^2)$ substituiert, da nicht über die Asymmetrie, sondern über Δ_0 integriert wird. Man erhält

$$Q^{-1}|_{\text{rel}} = \frac{\bar{P}\gamma^2}{\rho v^2} \int_{\Delta_{0,\min}}^{E_{\max}} \frac{dE}{2k_B T} \text{sech}^2\left(\frac{E}{2k_B T}\right) \int_{\Delta_{0,\min}}^E \frac{d\Delta_0}{\Delta_0} \sqrt{1 - \left(\frac{\Delta_0}{E}\right)^2} \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}. \quad (2.59)$$

Da wir zunächst nur die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen berücksichtigen, wird für die Relaxationszeit in (2.59) der Ausdruck aus (2.34) eingesetzt $\tau = \tau_d(\Delta_0, E)$. Dieses Integral lässt sich mit numerischen Methoden berechnen. Für den Temperaturbereich, in dem die Relaxationsrate der Tunnelsysteme kleiner als die Kreisfrequenz des äußeren Verzerrungsfeldes ist, das heißt $\omega\tau_{d,\min} \geq 1$, ergibt sich für die innere Reibung

$$Q^{-1}|_{\text{rel,d}}^{\omega\tau_{d,\min} \geq 1} \approx \frac{C}{m} \frac{\pi^4}{12} k_B^3 \frac{T^3}{\omega} \propto \frac{T^3}{\omega}, \quad (2.60)$$

mit den Konstanten C und m aus (2.49) und (2.46). Für den Temperaturbereich, in dem immer genügend Tunnelsysteme schnell genug mit dem äußeren Feld relaxieren können, $\omega\tau_{d,\min} \ll 1$, ergibt sich für die innere Reibung ein temperaturunabhängiges

Plateau

$$Q^{-1} \Big|_{\text{rel}} \approx \frac{\pi}{2} C . \quad (2.61)$$

Abbildung 2.27 zeigt schematisch die theoretische Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung in der halblogarithmischen Darstellung. Solange sich das Glas in dem Temperaturbereich befindet, in dem $\omega\tau_{d,\min} \geq 1$ gilt, steigt die innere Reibung proportional zur 3. Potenz der Temperatur, $Q^{-1} \propto T^3$. Nach einem Übergangsbereich in dem etwa $\omega\tau_{d,\min} \approx 1$ gilt, erwartet man bei höheren Temperaturen ein Plateau mit dem Wert $Q^{-1} = \pi/2 C$.

Normalleitendes metallisches Glas Für den Fall eines metallischen Glases im normalleitenden Zustand kommt zu der Relaxation auf Grund der Wechselwirkung mit Phononen die Relaxation über Elektronen hinzu. Im Bereich hoher Temperaturen bildet sich unabhängig von der Art des Relaxationsmechanismus wieder ein temperaturunabhängiges Plateau aus. Auf Grund der viel größeren Relaxationsrate über Elektronen erstreckt sich dieses Plateau bis in einen viel niedrigeren Temperaturbereich, da immer genug Tunnelsysteme schnell genug relaxieren können.

Im Temperaturbereich, in dem $\omega\tau_{e,\min} \geq 1$ für das metallische Glas gilt, wächst die innere Reibung proportional mit der Temperatur. Berechnet man das Integral (2.59) unter Berücksichtigung beider Relaxationsraten $\tau^{-1} = \tau_d^{-1} + \tau_{e,n}^{-1}$, so erhält man für den Bereich niedriger Temperaturen, $\omega\tau_{e,\min} \geq 1$, eine mit der Temperatur proportional ansteigende innere Reibung

$$Q^{-1} \Big|_{\text{rel,e}} \approx C \frac{\pi^3}{24} K \frac{k_B T}{\hbar \omega} \propto \frac{T}{\omega} . \quad (2.62)$$

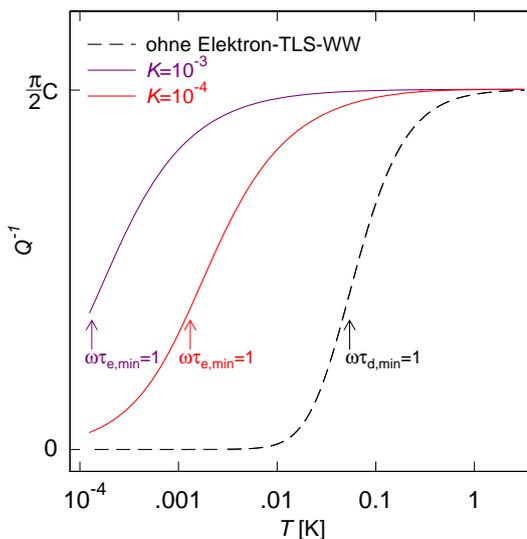


Abb. 2.28: Numerische Berechnung der Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung. Neben dem Fall ohne Tunnelsystem-Elektron-Wechselwirkung, wie er in dielektrischen Gläsern auftritt, ist die innere Reibung für zwei normalleitende metallische Gläser mit unterschiedlicher Kopplungskonstante dargestellt. Auf Grund der viel größeren Relaxationsrate über Elektronen, erstreckt sich das temperaturunabhängige Plateau, abhängig von der Kopplungsstärke K , in einen niedrigeren Temperaturbereich.

Abbildung 2.28 zeigt schematisch die theoretische Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung. Gestrichelt ist die Vorhersage für den Fall eines dielektrischen Glases dargestellt. Wie schon in Abbildung 2.27 ist die Temperatur gekennzeichnet, unterhalb derer die innere Reibung auf Grund des Relaxationsprozesses über Phononen mit $Q^1 \propto T^3$ ansteigt. Des weiteren ist die innere Reibung zweier fiktiver normalleitender metallischer Gläser mit unterschiedlicher Kopplungskonstante dargestellt. Deren temperaturunabhängiges Plateau erstreckt sich mit größer werdender Kopplungsstärke zu tieferen Temperaturen hin. Im Temperaturbereich, in dem die Relaxationsrate über Elektronen kleiner als die Kreisfrequenz des treibenden Verzerrungsfeldes ist, $\omega\tau_{d,\min} \geq 1$, wächst sie linear mit der Temperatur $Q^{-1} \propto T$.

Supraleitendes metallisches Glas Betrachtet man ein supraleitendes metallisches Glas, hängt dessen innere Reibung stark davon ab, welcher Relaxationsmechanismus vorherrscht, wenn der Übergang zur Supraleitung stattfindet.

Ist die kritische Temperatur T_c so hoch, dass die innere Reibung bei T_c von der Relaxation über Phononen dominiert wird, erwartet man keinen Unterschied zu einem dielektrischen Glas, da die Relaxation über Elektronen schnell ausstirbt, weil die Elektronen zu Cooper-Paaren kondensieren.

Liegt T_c in dem Temperaturbereich, in dem die Relaxation der Tunnelsysteme per Wechselwirkung mit Elektronen bestimmt wird, wirkt sich das Kondensieren der Elektronen zu Cooper-Paaren unterhalb von T_c stark auf die innere Reibung aus. Abbildung 2.29 zeigt schematisch die Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der

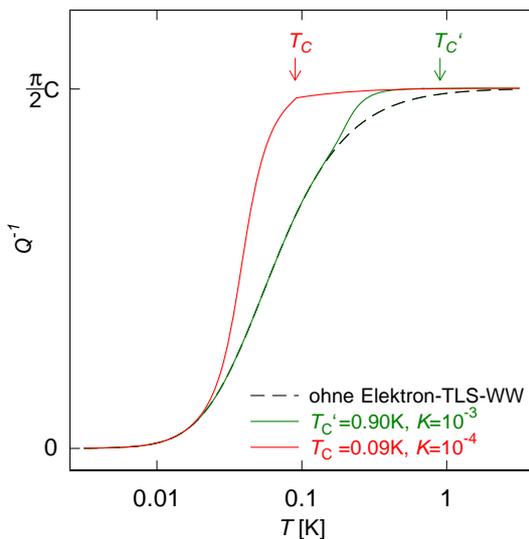


Abb. 2.29: Numerische Berechnung der inneren Reibung für zwei supraleitende metallische Gläser mit unterschiedlicher kritischer Temperatur. Die innere Reibung sinkt unterhalb der jeweiligen kritischen Temperatur T_c schnell auf den Wert, den sie ohne Tunnelsystem-Elektron-Wechselwirkung annähme.

inneren Reibung für zwei metallische Gläser mit unterschiedlicher kritischer Temperatur T_c und T_c' . Gestrichelt ist als Referenz der Fall eines dielektrischen Glases

dargestellt. Für den Fall, dass die kritische Temperatur so hoch ist, dass sich der Einfluss erhöhter Relaxation durch Elektronen kaum noch bemerkbar macht, wirkt sich das Einsetzen der Supraleitung nur wenig auf die innere Reibung aus. Dieser Fall ist in Abbildung 2.29 mit T'_c dargestellt. Im Temperaturbereich unterhalb von T'_c erkennt man das zu niedrigeren Temperaturen erweiterte Plateau, bevor die innere Reibung mit sinkender Temperatur dem Verlauf eines dielektrischen Glases folgt. Ist T_c in dem Temperaturbereich, in dem die Relaxation über Elektronen die innere Reibung dominiert, ist das temperaturunabhängige Plateau bis T_c erweitert. Anschließend sinkt die innere Reibung drastisch auf den Wert, den sie ohne Tunnelsystem-Elektron-Wechselwirkung annimmt.

3. Experimentelle Methoden

Im vorherigen Kapitel wurde dargelegt, welches die theoretischen Grundlagen sind, mit denen sich Gläser bei sehr tiefen Temperaturen beschreiben lassen. Im Speziellen wurden mit Hilfe dieser Grundlagen Voraussagen getroffen wie sich die relative Schallgeschwindigkeit und die innere Reibung unter Temperaturvariation verhalten. In diesem Kapitel werden die Probe und die verwendeten experimentellen Methoden beschrieben, mit denen die elastischen Eigenschaften untersucht wurden.

Die meisten akustischen Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit angefertigt wurden, wurden bei Temperaturen unterhalb weniger Kelvin durchgeführt. Um diese Temperaturen zu erreichen wurde ein kommerziell erhältlicher $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostat verwendet. Auf die Funktionsweise dieses Kryostaten wird hier nicht weiter eingegangen, sondern auf die Fachliteratur (z.B. [Ens05, Pob07]) verwiesen.

Stattdessen wird zunächst auf die verwendete Probe aus metallischem Glas sowie deren Bearbeitung eingegangen. Anschließend werden die verwendeten Messmethoden zur Bestimmung der elastischen Eigenschaften und die dazu notwendige Messapparatur vorgestellt. Zuletzt wird beschrieben mit welchen Methoden die Temperatur ermittelt wird, bei welcher die Experimente durchgeführt wurden.

3.1 Probe

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten akustischen Messungen wurden mit einer Probe aus metallischem Glas durchgeführt. Dabei handelt es sich um die auf Zirkon basierende Legierung $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$. Das metallische Glas wurde von dem Unternehmen YKK¹ hergestellt.

In diesem Abschnitt wird zunächst das Material $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ beschrieben. Daraufhin wird die Geometrie der Probe samt ihrer Vorzüge erläutert, bevor anschließend dargestellt wird, auf welche Weise die Probe angefertigt und für die Durchführung der Experimente präpariert wurde.

3.1.1 Material

Amorphizität Dass die Probe vollständig amorph ist, konnte durch Röntgendiffraktometrie bestätigt werden. Abbildung 3.1 zeigt eine Röntgendiffraktometrieauf-

¹YKK Corporation, Yoshida Kurobe City, Toyama, Japan.

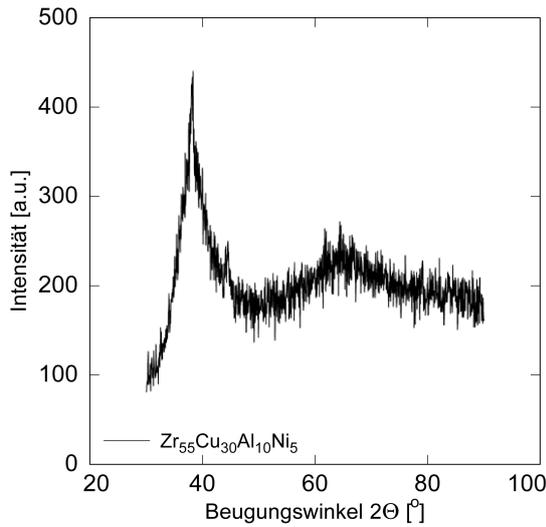


Abb. 3.1: Röntgendiffraktometrieaufnahme der untersuchten Probe. Die Abwesenheit scharfer Reflexe belegt, dass die Probe amorph ist.

nahme der untersuchten Probe, welche am KIT² angefertigt wurde. Sie zeigt ein Spektrum aus breiten diffusen Beugungsreflexen. Das Ausbleiben scharfer Reflexe ist mit dem Fehlen einer periodischen atomaren Struktur erklärbar, die verwendete Probe also amorph.

Mechanische und thermische Eigenschaften Mit Hilfe von Ultraschallmessungen und dynamischer Differenzkalorimetrie wurde das Material im Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur und der Kristallisationstemperatur untersucht [Ino95, Tam07]. Tabelle 3.1 enthält einige Materialparameter des massiven metallischen Glases $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$.

$Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$

Glasübergangstemperatur	$T_g = 683$ K
Kristallisationstemperatur	$T_x = 767$ K
Sprungtemperatur	$T_c = 0,90$ K
Zugspannung*	$\sigma_Z = 1620$ MPa
Druckspannung*	$\sigma_D = 1810$ MPa
Elastizitätsmodul*	$E = 87,5$ GPa
Poissonzahl*	$\nu = 0,362$
Dichte*	$\rho = 6785$ kg/m ³
long. Schallgeschwindigkeit*	$v_l = 4690$ m/s
trans. Schallgeschwindigkeit*	$v_t = 2200$ m/s

Tab. 3.1: Materialparameter der untersuchten Probe. Die Bestimmung der mechanischen Eigenschaften stammt von Inoue *et al.* [Ino95, Tam07]. Die mit (*) gekennzeichneten Größen gelten bei 300 K. Zur Bestimmung der Sprungtemperatur siehe Abbildung 3.3.

²KIT: Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe, Deutschland.

Sprungtemperatur Wie bereits in Kapitel 2.3.5 erläutert, spielt der Einfluss der Elektronen auf Grund ihrer Wechselwirkung mit Tunnelsystemen eine entscheidende Rolle zum Verständnis der elastischen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen. Wie viele zirkonbasierten metallischen Gläser wird auch $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ unterhalb einer Sprungtemperatur T_c supraleitend. Daher ist es wichtig, die Sprungtemperatur der verwendeten Probe zu bestimmen.

Um die Sprungtemperatur zu ermitteln, wurde die ac-Suszeptibilität der Probe unterhalb von 1,5 K mittels der Messung der Gegeninduktivität zweier Spulen bestimmt. Abbildung 3.2 zeigt schematisch die Spulenanordnung. Durch eine Spule wird ein

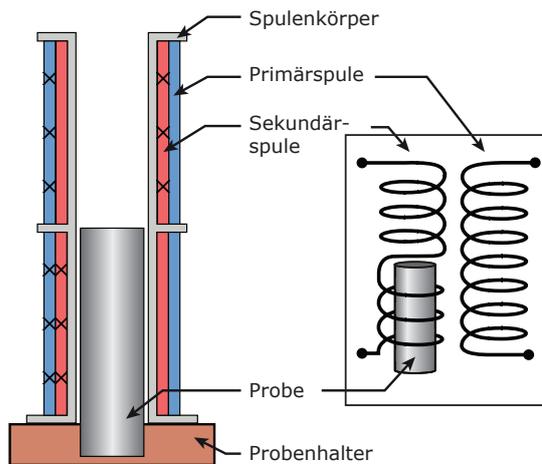


Abb. 3.2: Schematische Schnittansicht des Aufbaus zur Messung der magnetischen Suszeptibilität. Zur besseren Unterscheidbarkeit sind die Primär- und Sekundärspulen in dieser Darstellung blau und rot eingefärbt. Die Kreuze geben hierbei die Richtung des Windungssinns in die Zeichenebene an. Zur Verdeutlichung der Spulenanordnung ist diese zusätzlich im Bildausschnitt skizziert. Aus [Rot13].

Magnetfeld erzeugt (Primärspule), in welchem sich die zu vermessende Probe befindet. Mit einer weiteren Spule (Sekundärspule) kann nun die Suszeptibilität ermittelt werden. Dies geschah mit einer Induktivitätsmessbrücke³ bei einer Anregungsfrequenz von 16 Hz. Die Messung wurde in einem $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten im Temperaturbereich von 100 mK bis 1,5 K durchgeführt.

Abbildung 3.3 zeigt die gemessene Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Temperatur. Aufgetragen ist lediglich der Bereich um T_c in dem sich die Suszeptibilität stufenartig ändert, da sich unterhalb und oberhalb des dargestellten Temperaturbereiches ein annähernd temperaturunabhängiges Verhalten zeigte. Die annähernd temperaturunabhängige Suszeptibilität bei höheren Temperaturen ist in Übereinstimmung mit einer dc-Magnetisierungsmessung, welche ein leicht paramagnetisches Verhalten zwischen 2 K und Raumtemperatur zeigt, welche mit einem kommerziellen SQUID-Magnetometer⁴ gemessen wurde. Die stufenartige Änderung der Suszeptibilität erklärt sich dadurch, dass bei T_c das von der Primärspule erzeugte Magnetfeld, welches das Material bei höheren Temperaturen durchdringen kann, auf Grund des Meißner-Ochsenfeld-Effekts aus dem Material verdrängt wird, sobald dieses supraleitend wird. Auf diese Weise konnte die Sprungtemperatur der Probe auf $T_c = 0,90$ K

³LR-700 AC Induktivitätsmessbrücke, Linear Research Inc., San Diego, CA, USA.

⁴MPMS XL, Quantum Design Inc., San Diego, CA, USA.

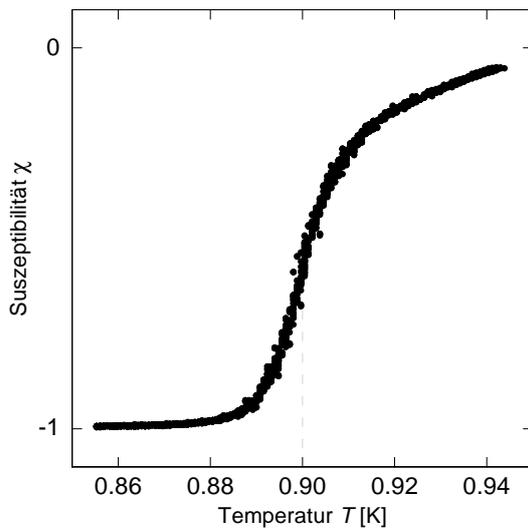


Abb. 3.3: Suszeptibilität des metallischen Glases $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ als Funktion der Temperatur. Dargestellt ist der Temperaturbereich um die kritische Temperatur $T_c = 0,90$ K des Materials.

bestimmt werden.

Unabhängig von dieser Suszeptibilitätsmessung lässt sich die Sprungtemperatur der Probe auch mit Hilfe der elastischen Messungen bestimmen. Bei temperaturabhängigen Messungen sowohl in der relativen Schallgeschwindigkeit (siehe Abbildung 4.20) als auch in der inneren Reibung (Abbildung 4.23) zeigt die jeweilige Größe einen „Knick“ bei $T = 0,9$ K. In beiden Fällen zeigt sich bei dieser Temperatur ein lokales Minimum in der jeweiligen Messgröße.

Mit einem sehr großen unterkühlten Bereich $\Delta T = T_x - T_g$ von mehr als 80 K, eignet sich die Legierung $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ sehr gut zur Herstellung von mehreren cm-großen massiven metallischen Gläsern [Ino95]. Damit eröffnet sich die Möglichkeit, quasi beliebig geformte mechanische Oszillatoren herzustellen.

3.1.2 Double-Paddle-Oszillator

Im folgenden Abschnitt wird die Geometrie des *Double-Paddle-Oszillators* (DPO) und deren Vorzüge erläutert, bevor anschließend auf die Herstellung eingegangen wird.

Geometrie

Die prinzipielle Idee für niederfrequente Messungen akustischer Eigenschaften Proben mit der Form von Double Paddle Oszillatoren zu verwenden wurde 1985 von Kleiman *et al.* [Kle85] entwickelt und deren Geometrie von White und Pohl [Hes96, Whi95] weiter verbessert. Die Abmessungen des in dieser Arbeit verwendeten DPOs sind Abbildung 3.4 zu entnehmen. Die Probe hat im unteren Bereich einen Fuß, durch

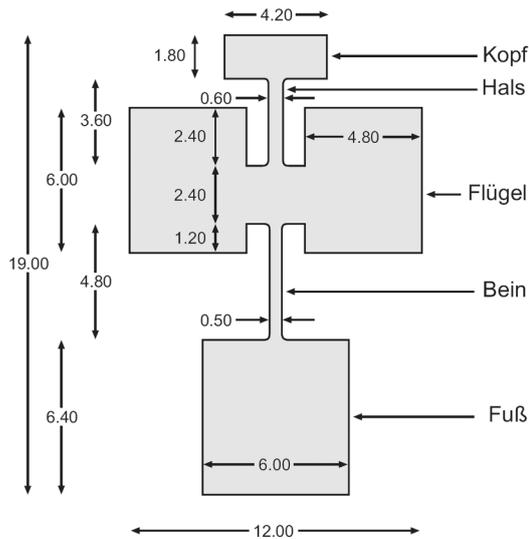


Abb. 3.4: Geometrie des verwendeten DPOs. Bemaßung in mm. Die Dicke beträgt 0,235 mm.

welchen der DPO mit dem Probenhalter verbunden ist (siehe Abschnitt 3.2.2). Auf ein Bein folgt der Rumpf, an dem sich zwei Flügel befinden. Des Weiteren befindet sich an dem Rumpf ein Hals auf den ein Kopf folgt.

Schwingungsmoden Die Geometrie des DPOs hat einige Vorteile gegenüber simplen quaderförmigen Stäben, sogenannter Vibrating-Reeds. Zu den hervorstechenden Vorteilen der DPO-Struktur gehört ihr großes Eigenmodenspektrum. Während man mit Hilfe eines Vibrating-Reeds meist nur die Grund- und erste Obermode detektieren kann, können mit Hilfe des DPOs eine ganze Reihe unterschiedlicher Moden untersucht werden. Welche Eigenmoden existieren, kann bei der simplen Geometrie eines dünnen Vibrating-Reeds analytisch berechnet werden, wohingegen die kompliziertere Geometrie des DPOs numerische Methoden erfordert. Dies erfolgt mittels einer Finite-Elemente Simulation. Die Finite-Elemente-Methode ermöglicht das näherungsweise Lösen von Problemen, die durch partielle Differentialgleichungen beschrieben werden können. Eine weitergehende Einführung in diese Methodik liefert zum Beispiel [Bra07]. Neben der Geometrie gehen in die Berechnung noch Randbedingungen wie die Einspannungen am DPO-Fuß und materialspezifische Parameter wie Dichte und elastische Konstanten ein. Die in dieser Arbeit dargestellten Ergebnisse wurden mit dem kommerziellen Programm COSMOSWorks⁵ gewonnen. Abbildung 3.5 zeigt die Ergebnisse dieser Finite-Elemente-Berechnungen der experimentell relevanten Moden. Nicht berücksichtigt sind Eigenmoden, bei denen ausschließlich Bewegungskomponenten parallel zur DPO-Oberfläche auftreten, da sich diese mit dem in dieser Arbeit verwendeten Aufbau nicht anregen und detektieren lassen. Zu erkennen sind drei Biegeschwingungen (B1–B3), drei Torsionsschwin-

⁵COSMOSWorks 2007, Dassault Systèmes SolidWorks Corporation, Concord, MA, USA.

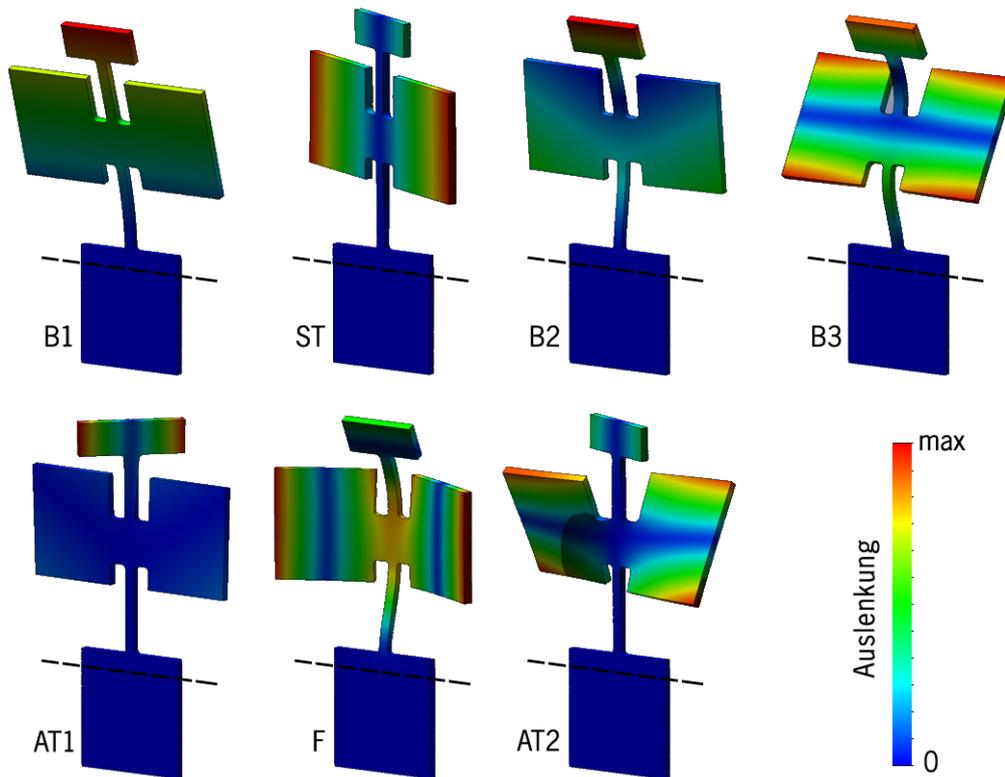


Abb. 3.5: Finite-Elemente-Berechnung der sieben gemessenen Eigenmoden des DPOs. Farbcodiert ist die relative Auslenkung dargestellt. Da der Fuß des DPOs mit dem Probenhalter verbunden ist, wird der Bereich unterhalb der gestrichelten Linie als Einspannung in der Simulation „festgehalten“.

gungen (ST, AT1 und AT2) und die so genannte *Flapping*-Schwingung (F). Eine Übereinstimmung der berechneten mit den tatsächlich auftretenden Bewegungsformen konnten durch *Laser-Doppler-Vibrometrie*-Messungen bestätigt werden [Liu01]. Hervorzuheben sind die antisymmetrischen Torsionsmoden, im Besonderen die Torsionsmode AT1. Bei dieser Mode schwingen der Kopf und die Flügel gegenphasig, also mit einer Phasenverschiebung von 180° zueinander. Die Auslenkung der Flügel ist viel geringer als die des Kopfes, da die Flügel bezüglich der Symmetrieachse des DPOs ein vielfach größeres Trägheitsmoment haben. Eine gute Detektierbarkeit der Bewegung auch dieser Mode wurde bei dem Design des Probenhalters explizit berücksichtigt. Eine genaue Beschreibung der experimentellen Anordnung erfolgt in Kapitel 3.2.2.

Neben der Vielzahl der zur Verfügung stehenden Eigenmoden, hat die DPO-Geometrie noch zwei weitere Vorteile gegenüber der Vibrating-Reed-Struktur. Abbil-

Abbildung 3.6 zeigt farbkodiert die Verzerrung bei Schwingungsmoden des Vibrating-Reeds und des DPOs. Anders als beim Vibrating-Reed, bei dem die größte Verzerrung im Bereich der Einspannung auftritt, ist bei den antisymmetrischen Torsionsmoden des DPOs (AT 1, AT 2) fast die gesamte Schwingungsenergie im oberen Bereich des DPOs lokalisiert, sodass der untere Bereich in der Nähe der Einspannung praktisch verzerrungsfrei ist. Eine Energiedissipation über die Einspannung in den Probenhalter

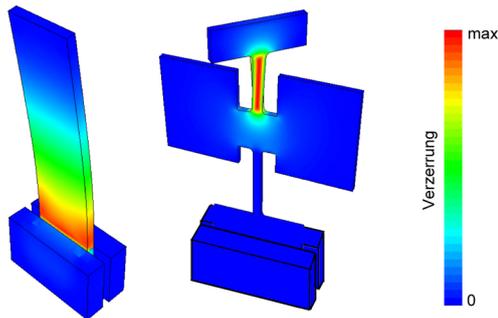


Abb. 3.6: Darstellung der simulierten Verzerrungen der Grundmode eines Vibrating-Reeds und der AT1-Mode eines DPOs. Während die Verzerrung beim Vibrating-Reed an der Einspannung maximal ist, ist sie beim DPO an gleicher Stelle vernachlässigbar gering. Aus [Hei02].

ter wird bei diesen Schwingungsmoden minimiert. Dies ist besonders hervorzuheben, da in den hier diskutierten Experimenten die inverse Güte der Resonanzen als Maß für die innere Reibung des Materials dienen soll und äußere Beiträge zur Dämpfung daher minimal sein sollen. Durch die Wahl der antisymmetrischen Torsionsmoden wird somit ein zusätzlicher Beitrag zur inneren Reibung, welcher von der Einspannung herrührt, vermieden.

Dass die Schwingungsform dieser Moden weitestgehend entkoppelt vom Probenhalter sind, bietet außerdem noch den Vorteil, dass von außen auftretende mechanische Störungen, wie zum Beispiel Trittschall und Pumpenvibrationen, nur begrenzt ein-koppeln können.

Herstellung

Die filigrane Form des DPOs (Abbildung 3.4) wurde mit der Technik des Draht-erodierens aus einem größeren massiven Werkstück geschnitten. Bei dieser Technik nähert sich ein positiv geladener Draht dem negativ geladenen Werkstück, woraufhin sich ein Lichtbogen bildet, sobald der Abstand gering genug ist. Bei dieser Funkenentladung wird ein kleines Stück des zu bearbeitenden Werkstücks abgetragen. Sowohl die große Vorder- und Rückseite, als auch die Seitenflächen der Probe wurden auf diese Weise bearbeitet.

Oberfläche

Die Abbildungen 3.7 und 3.8 zeigen Rasterelektronenmikroskopieaufnahmen der DPO-Oberfläche. Abbildung 3.7 zeigt die Oberfläche, wie sie nach dem Herausschneiden mittels Drahterodierens aussieht. Die Oberflächenbeschaffenheit ist nach dieser Prozedur vergleichsweise rau. Um eine geringere Oberflächenrauheit zu erreichen wurde der DPO anschließend beidseitig mit einer Läpp- und Poliermaschine poliert. Als Schleifmittel wurde eine Korundpulver-Glycerin-Mischung benutzt. Die Körnung des Korundpulvers betrug $3\ \mu\text{m}$ zum Vorschleifen und $1\ \mu\text{m}$ zum Feinschleifen. Dies führte zu einer glatteren Oberfläche, wie in Abbildung 3.8 ersichtlich ist. Die Kanten wurden mit Schleifpapier mit 1200er-Körnung geschliffen, was einer Korngröße von etwa $20\ \mu\text{m}$ entspricht.

Um zu gewährleisten, dass der DPO gut thermalisiert werden kann, wurde auf eine der Oberflächen eine $800\ \text{nm}$ -Schicht Kupfer und zur Vermeidung von Oxidation $200\ \text{nm}$ Gold aufgesputtert. Da Elektronen in einem Supraleiter unterhalb der Sprungtemperatur T_c zu Cooper-Paaren kondensieren, tragen sie dann nicht zur Wärmeleitfähigkeit bei. Da weder Kupfer noch Gold im Temperaturbereich der durchgeführten Experimente supraleitend wird, steht somit auch ein elektronischer Beitrag zur Wärmeleitfähigkeit zur Verfügung, was eine deutlich bessere Thermalisierung zur Folge hat. Sowohl durch den DPO-Körper selbst, als auch durch die Grenzfläche zwischen DPO-Fuß und Probenhalter stünden ohne die aufgesputterte Schicht einzig Phononen zur Verfügung, deren Zahl zu niedrigeren Temperaturen abnimmt. Eine Abschätzung der Wärmeleitfähigkeit wird in Abschnitt 3.3.1 gemacht.

Zusätzlich zur Thermalisierungsschicht ist der auf der gegenüberliegenden Oberfläche des DPOs im Bereich des DPO-Halses und des DPO-Kopfes eine $200\ \text{nm}$ -Schicht Niob aufgesputtert. Diese Schicht wird benötigt, um die DPO-Bewegung auch oberhalb der Sprungtemperatur der Probe induktiv detektieren zu können (siehe dazu Abschnitt 3.2.3).

Die aufgetragenen Metallschichten haben auch Auswirkungen auf die Resonanzfrequenz und die innere Reibung des DPOs. Nach [Whi95] ergibt sich für die Torsionsmoden eine Änderung der Resonanzfrequenz

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{1}{2} \frac{d_{\text{film}}}{d_{\text{sub}}} \left(\frac{3G_{\text{film}}}{G_{\text{sub}}} - \frac{\rho_{\text{film}}}{\rho_{\text{sub}}} \right) \quad (3.1)$$

und

$$Q^{-1} = Q_{\text{sub}}^{-1} + \frac{3d_{\text{film}}}{d_{\text{sub}}} \frac{G_{\text{film}}}{G_{\text{sub}}} Q_{\text{film}}^{-1} \quad (3.2)$$

für die innere Reibung. Die Indizes stehen hier für die aufgetragene Metallschicht (film) und für das Substrats (sub), während d für die jeweilige Dicke, G für den Schermodul und ρ für die Dichte steht. Für die Biegemoden muss der Elastizitätsmodul E statt des Schermoduls G eingesetzt werden.

Mit Hilfe der Materialeigenschaften des Probenmaterials (siehe Tabelle 3.1) kann der Einfluss der Metallschicht abgeschätzt werden. Der Schermodul

$$G = \frac{1}{2(1 + \nu)} \cdot E \quad (3.3)$$

kann für isotrope Medien mit Hilfe der Poissonzahl und des Elastizitätsmodul berechnet werden. Setzt man die entsprechenden Werte der Kupferschicht also für den Modul $G_{\text{Cu}} \approx 45 \text{ GPa}$ und die Dichte $\rho_{\text{Cu}} = 8920 \text{ kg/m}^3$ ein, erhält man für die Änderung der Resonanzfrequenz $\Delta f/f \approx 0,006$. Nimmt man zur Abschätzung des Einflusses des Films auf die innere Reibung $Q_{\text{film}}^{-1} \simeq Q_{\text{sub}}^{-1}$ in Gleichung 3.2 an, erhält man für die Änderung der inneren Reibung $\Delta Q^{-1}/Q^{-1} \approx 0,018$.

Einige der für diese Berechnung angenommenen Parameter sind nur Schätzwerte, da nicht alle tatsächlichen Werte bekannt sind, jedoch ändert eine leichte Korrektur einiger Materialparameter nichts an der Aussage, dass die aufgesputterte Thermalisierungsschicht die Messgrößen nur geringfügig beeinflusst.

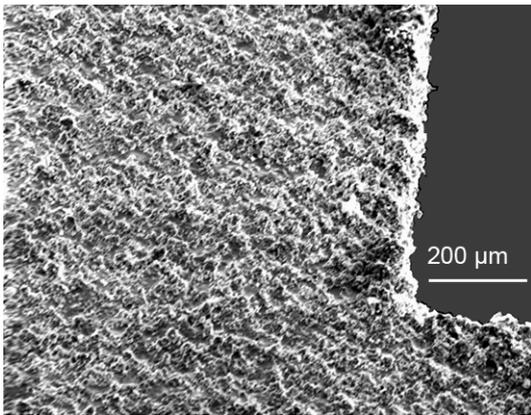


Abb. 3.7: Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahmen eines drahterodierten DPOs.

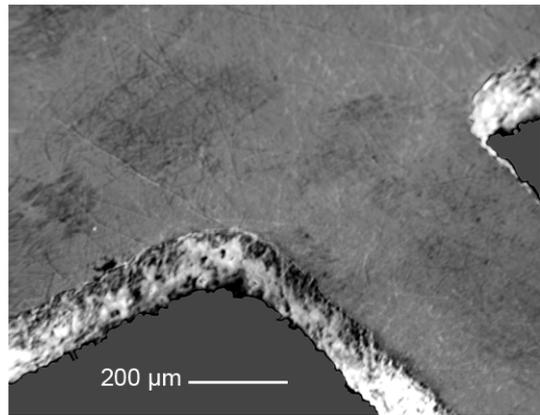


Abb. 3.8: Aufnahme eines beidseitig an den Oberflächen polierten DPOs.

3.2 Durchführung des Experiments

Alle im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten akustischen Messungen beruhen auf der Bestimmung der Frequenz und Güte der Schwingungsmoden von Double Paddle Oszillatoren. In diesem Abschnitt wird zunächst der generelle experimentelle Aufbau vorgestellt, anschließend wird auf Details, wie den für die Experimente konzipierten Probenhalter, die Anregungsmethode und die Detektionsmethoden, eingegangen.

3.2.1 Experimenteller Aufbau

Das allgemeine Messprinzip besteht darin, dass die verwendete Probe bei einer ihrer Resonanzfrequenzen zum Schwingen angeregt wird. Diese Schwingungsmoden werden dann in Abhängigkeit von der Temperatur gemessen. Abbildung 3.9 zeigt den allgemeinen Aufbau der verwendeten Messelektronik. Ein Funktionsgenerator erzeugt eine Wechselspannung von üblicherweise weniger als $1 V_{pp}$ mit der Frequenz $f/2$ und regt damit den DPO zu einer Schwingung der Frequenz f an, wie in Abschnitt 3.2.2 näher erläutert wird. Ein Lock-In-Verstärker vergleicht das Signal mit einem Referenzsi-

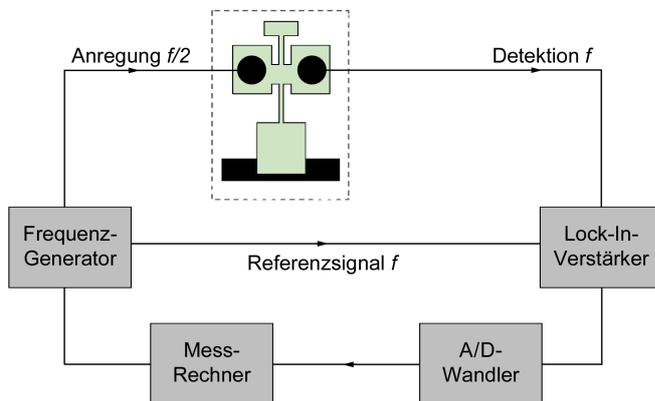


Abb. 3.9: Schematischer Aufbau der Messelektronik zur Anregung und Detektion der DPO-Schwingung. Der gestrichelte Rahmen symbolisiert den Kryostaten.

gnal, welches er vom Funktionsgenerator erhält. Der Lock-In-Verstärker arbeitet im $2f$ -Modus, da das Detektionssignal des schwingenden DPOs die doppelte Anregungsfrequenz hat. Das Lock-In-Prinzip ermöglicht ein verbessertes Signal-zu-Rauschen Verhältnis, da nur ein schmales Frequenzband um f mit Hilfe eines Bandpassfilters verstärkt wird. Insbesondere wird elektrisches Übersprechen der Anregungsspannung der Frequenz $f/2$ zur Detektionsseite herausgefiltert. Der Lock-In-Verstärker kann gleichzeitig die Amplitude U_d und die Phasendifferenz ϕ zwischen Anregung und Detektion ermitteln und stellt so die Signale $U_d \cos \phi$ und $U_d \sin \phi$ bereit. Mittels eines Analog/Digital-Wandlers wird das Signal digitalisiert und an einen Messrechner weitergegeben. Messprogramme speichern die Messsignale des Verstärkers und steuern den Funktionsgenerator, sowie die Temperaturregelung.

3.2.2 Kapazitive Anregung und Detektion

Bevor im Folgenden auf die Technik der kapazitiven Anregung und Detektion der DPO-Schwingung eingegangen wird, wird zunächst der verwendete Probenhalter beschrieben, welcher für diese Messungen entwickelt wurde.

Probenhalter

Abbildung 3.10 zeigt eine schematische Darstellung des verwendeten Probenhalters. Dieser besteht aus einem monolithischen Kupferkörper, in welchem eine Stufe von etwa $40\ \mu\text{m}$ Höhe gefräst ist. Der DPO wird an seinem Fuß mittels einer Einspannfeder auf die obere Stufe des Halters gedrückt. Der Körper des DPOs einschließlich seiner

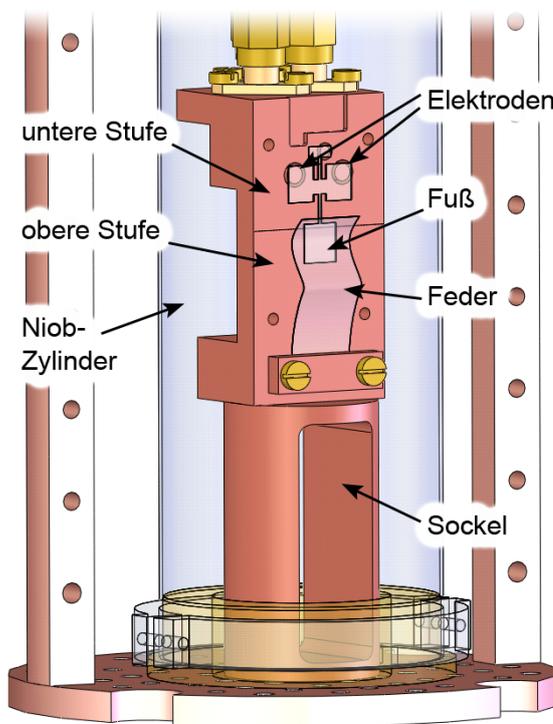


Abb. 3.10: Schematische Darstellung des Probenhalters, wie er im Kryostaten angebracht ist. Eine Einspannfeder (hier transparent dargestellt) drückt den Fuß des DPOs (ebenfalls transparent) auf den Probenhalter. Der gesamte Aufbau befindet sich in einer Niobabschirmung, welche durch eine Klammer (transparent) gehalten wird. Damit sich die Probe möglichst tief in dem einseitig geschlossenen Niobzylinder befindet, steht der Probenhalter auf einem Sockel.

Flügel, Hals und Kopf befinden sich somit etwa $40\ \mu\text{m}$ entfernt der Probenhalteroberfläche der unteren Stufe. Hinter den Flügeln und auf einer Seite des Kopfes befinden sich drei zylindrische Aussparungen im Halter, in denen sich die Elektroden befinden. Dies wird in Abbildung 3.11 dargestellt. Die Elektroden führen zu den Innenleitern von SMA-Steckern, welche über Koaxialkabel mit der Elektronik außerhalb des Kryostaten verbunden sind (siehe Abbildung 3.12). Der gesamte Aufbau befindet sich in einem einseitig geschlossenen Niobzylinder, welcher mit einer Klammer an dem Kryostaten fixiert ist. Unterhalb der Sprungtemperatur von Niob ($T_{c,\text{Nb}} = 9,26\ \text{K}$) wird der Zylinder supraleitend und schirmt dann gegen elektromagnetische Störungen von

außen. Um mit dem DPO möglichst weit von der geöffneten Seite des Niobzylinders entfernt zu sein, befindet sich der Probenhalter auf einem Kupfersockel, welcher am Kryostaten fixiert ist. Dieser hat etwa die gleiche Größe wie der Probenhalter selbst. Abbildung 3.11 zeigt eine Detailansicht des Probenhalters in welcher die drei Elektroden besonders hervorgehoben sind. Diese wurden mit einem Epoxidharz⁶ im Probenhalter vergossen. Abschließend wurde die Oberfläche in diesem Bereich etwa $40\ \mu\text{m}$ eingefräst, wodurch die bereits erwähnte Stufe entsteht. Die Elektroden sind somit keine hervorstehenden Objekte, sondern Teil des Probenhalters. Dies erhöht die Stabilität und erlaubt eine einfache Positionierung des DPOs.

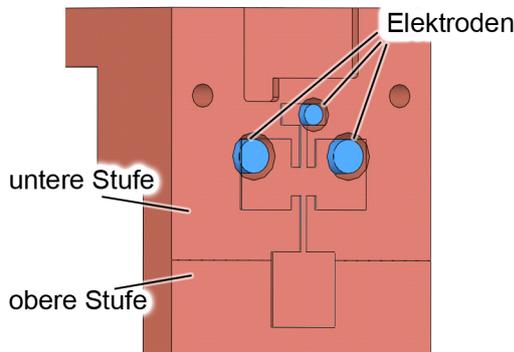


Abb. 3.11: Bildausschnitt der dreidimensionalen Zeichnung des Probenhalters. Farblich hervorgehoben sind die Elektroden zur kapazitiven Anregung und kapazitiven Detektion des DPOs, dessen Umrisse zur Orientierung zusätzlich eingezeichnet sind. Die integrierte Struktur des monolithischen Aufbaus erhöht die Stabilität und ermöglicht eine Unterdrückung elektrischer Übersprechens.

Kapazitive Anregung

Die kupferne Elektrode bildet mit der metallischen DPO-Oberfläche auf der Anregungsseite einen Kondensator mit der Kapazität

$$C_a = \frac{\varepsilon_0 A}{x}, \quad (3.4)$$

wobei x den Gleichgewichtsabstand zwischen DPO und Elektrodenoberfläche, A deren Fläche und $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$ die Permittivität des Vakuums bezeichnen. Mit einem Abstand von etwa $40\ \mu\text{m}$ und einer Elektrodenfläche von etwa $2,5\ \text{mm}^2$ ergibt sich eine Kapazität in der Größenordnung von $1\ \text{pF}$. Wird mit dem Funktionsgenerator eine periodische Spannung $U(t) = U_0 \cos(\frac{1}{2}\omega t)$ zwischen Elektrode und DPO erzeugt, so wirkt zwischen ihnen eine anziehende Kraft

$$F(t) = \frac{1}{2} C_a \frac{U^2(t)}{x} = \frac{1}{4} C_a \frac{U_0^2}{x} (1 + \cos \omega t). \quad (3.5)$$

Auf Grund von Ladungsinfluenz herrscht immer eine anziehende Kraft zwischen gegenpolig geladenen Kondensatorplatten. Daher wird der DPO von der Elektrode mit der doppelten Frequenz angezogen.

⁶STYCAST 1266, Hersteller: Emerson and Cuming, Canton, MA, USA.

Kapazitive Detektion

Das Prinzip der kapazitiven Detektion funktioniert analog zur kapazitiven Anregung und ist schematisch in Abbildung 3.12 skizziert. Bewegt sich der DPO, der eine Seite

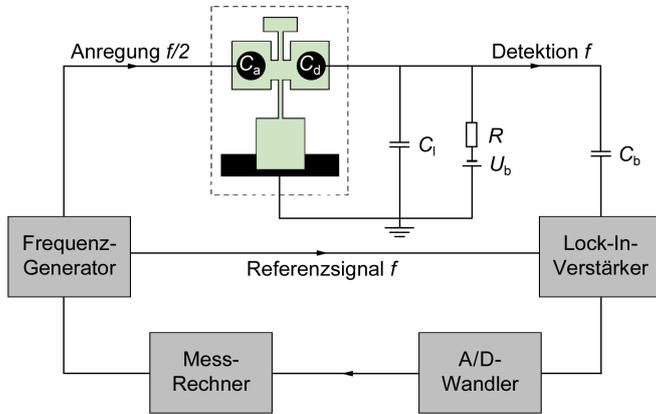


Abb. 3.12: Schematischer Aufbau der Messelektronik zur kapazitiven Anregung und Detektion. Der gestrichelte Rahmen symbolisiert den Kryostaten.

des Plattenkondensators darstellt, und ändert somit seinen Abstand zur Detektionselektrode, ändert sich auch die Kapazität C_d auf der Detektionsseite

$$C_d(t) = C_d \frac{1}{1 - \xi(t)/x} \stackrel{(\xi(t) \ll x)}{\approx} C_d \left(1 + \frac{\xi(t)}{x} \right), \quad (3.6)$$

wobei $\xi(t)$ wieder die Auslenkung des DPOs aus der Gleichgewichtslage ist. Mit Hilfe einer Gleichspannungsquelle wird an der Detektionselektrode über einen hochohmigen Vorwiderstand R eine Vorspannung U_b angelegt, die im Experiment typischerweise einige 100 V betrug. Dadurch fällt auf Grund der Kapazitätsänderung $C_d(t)$ eine Wechselspannung

$$U_d(t) = U_b \frac{\xi(t)}{x} \frac{C_d}{C_d + C_1} \frac{\omega R (C_d + C_1)}{\sqrt{1 + (\omega R (C_d + C_1))^2}}. \quad (3.7)$$

am Widerstand $R \approx 400 \text{ M}\Omega$ ab [Ber75]. Diese Detektionsspannung U_d ist durch eine Kapazität C_b von der Vorspannung U_b getrennt. Der letzte Term in (3.7) enthält auch vorliegende Leitungskapazitäten C_1 von einigen 100 pF. Mit den genannten Werten für R und C_1 und wegen der im Experiment verwendeten Frequenzen im Kilohertzbereich kann er durch 1 ersetzt werden. Mit der Abschätzung $C_1 \gg C_d$, folgt

$$U_d(t) = U_b \frac{\xi(t)}{x} \frac{C_d}{C_1} = U_b \frac{\xi(t)}{x^2} \frac{\varepsilon_0 A}{C_1}. \quad (3.8)$$

Die detektierte Spannung ist somit proportional zur Auslenkung des DPOs und umgekehrt proportional zum Abstandsquadrat zwischen Detektionselektrode und DPO. Mit den genannten Zahlenwerten und typischen Detektionsspannungen von einigen

Mikrovolt ergibt sich aus (3.8) eine Auslenkung des DPOs von einigen Å. Diese kleinen Auslenkungen rechtfertigen die Näherung in (3.6).

Wie in Abbildung 3.11 erkennbar ist, stehen für die kapazitive Detektion (und Anregung) der DPO-Bewegung drei Elektroden zur Verfügung. Je eine ist hinter den beiden Flügeln möglichst weit außen angebracht, um sowohl bei Torsions- als auch bei Biegeschwingungen die auftretende Abstandsänderung registrieren zu können. Da sich die Flügel des DPOs bei der antisymmetrischen Torsionsschwingung (AT 1) kaum bewegen (siehe Abbildung 3.5), ist zusätzlich hinter dem Kopf des DPOs eine weitere Elektrode angebracht, um auch diese Eigenmode messen zu können. Die freie Wahl der Elektroden bei Anregung und Detektion erlaubt eine experimentelle Identifikation der einzelnen Eigenmoden, da die Flügel des DPOs und dessen Kopf teilweise gegenphasig und teilweise in Phase zur Anregung schwingen.

3.2.3 Induktive Detektion

Die gerade vorgestellte kapazitive Detektionsmethode hat gewisse Nachteile. Auf Grund ihrer inhärenten Tiefpasscharakteristik auf Grund der Kabelkapazitäten wird das Detektionssignal mit steigender Frequenz immer geringer. Ein weiterer Nachteil der kapazitiven Detektionsmethode sind die sich widersprechenden Anforderungen an den Abstand des DPOs zu den Elektroden. Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, wächst die Signalgröße mit steigender Vorspannungsstärke U_b und einer Verringerung des Abstands zwischen DPO und Elektroden. Gleichzeitig steigt damit die Gefahr eines elektrischen Durchschlags, weshalb ein größerer Abstand des DPOs zu den Elektroden vorzuziehen ist. Zugleich wird in Abschnitt 4.1.3 die Notwendigkeit verdeutlicht, den DPO nur zu möglichst geringen Schwingungsamplituden anzuregen, um den Einfluss von Nichtlinearitäten zu vermeiden, was zwangsläufig auch zu einem kleinen Detektionssignal führt.

Aus diesen Gründen ist zur Messung der DPO-Schwingung auch eine induktive Detektionsmethode entwickelt worden, die im Folgenden erläutert wird. Zunächst wird das allgemeine Konzept vorgestellt, anschließend wird auf Details wie den veränderten Probenhalter und die mikrostrukturierte Aufnehmerspule eingegangen.

Der experimentelle Aufbau zur induktiven Detektion der DPO-Schwingung unterscheidet sich in einigen Punkten von dem zur kapazitiven Detektion, welcher in Abschnitt 3.2.1 vorgestellt wurde. Abbildung 3.13 zeigt den schematischen Aufbau der Messelektronik zur induktiven Detektion. Die Anregung der DPO-Bewegung erfolgt wieder kapazitiv über eine der drei zur Verfügung stehenden Elektroden. Anstatt einer weiteren Elektrode befindet sich nun über der DPO-Oberfläche eine Spule. Mit Hilfe dieser supraleitenden Spule, die supraleitend an die Einkoppelspule eines Strom-Sensor-SQUIDs (**S**uperconducting **Q**uantum **I**nterference **D**evice) angeschlossen ist, kann die DPO-Bewegung induktiv detektiert werden. Das detektierte

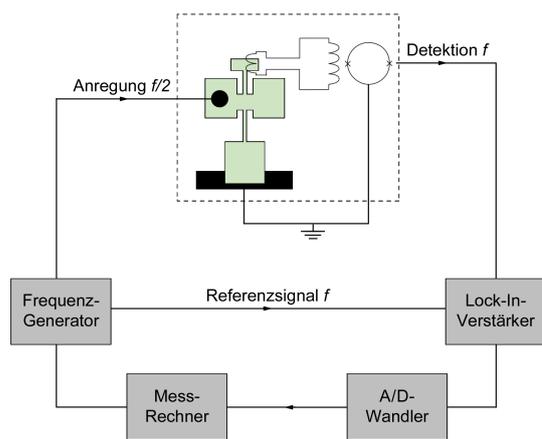


Abb. 3.13: Schematischer Aufbau der Messelektronik zur kapazitiven Anregung und induktiven Detektion. Der gestrichelte Rahmen symbolisiert den Kryostaten. Anstatt mit einer zweiten Elektrode, wird die Position des DPOs mit Hilfe einer Aufnehmerspule, angebracht oberhalb des DPO-Kopfes, die mit einem SQUID verbunden ist, detektiert.

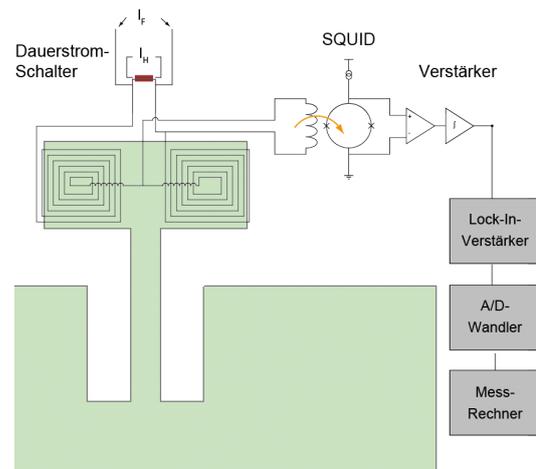


Abb. 3.14: Skizze der induktiven Detektion. Mit Hilfe eines Dauerstromschalters wird ein Strom in der Spule oberhalb des DPO-Kopfes präpariert, welcher ein statisches Magnetfeld erzeugt. Die Bewegung des DPOs führt, wegen seiner supraleitenden Nb-Oberfläche, zu einer Variation des magnetischen Flusses der in die Spule eindringt und so den Strom moduliert.

Signal wird verstärkt und an den Lock-In-Verstärker geleitet, welcher es wieder mit dem Referenzsignal des Funktionsgenerators abgleicht. Eine Vorspannung U_b für den DPO wird nicht benötigt.

Das genaue Detektionsprinzip kann anhand von Abbildung 3.14 verdeutlicht werden. Mit Hilfe eines Dauerstromschalters wird ein permanent fließender Strom in der supraleitenden Spule präpariert, welche sich über dem Kopf des DPOs befindet. Dieser Strom erzeugt ein permanentes rauscharmes Magnetfeld in der Umgebung der Spule. Wie in Abschnitt 3.1.2 erwähnt, ist die Oberfläche des DPO-Kopfes mit einer dünnen Schicht Niob beschichtet. Im supraleitenden Zustand ($T_{c,Nb} = 9,26 \text{ K}$) wird die Niobschicht für das magnetische Feld undurchdringlich und deformiert dieses, wenn sich der DPO im Feld bewegt. Diese Variation des Feldes induziert wiederum einen Kompensationsstrom in der Spule, welcher dem Dauerstrom überlagert ist.

Wie in Abbildung 3.14 zu sehen ist, ist die Spule an das SQUID gekoppelt. Die Spule, auch Aufnehmerspule genannt, in Kombination mit supraleitenden Drähten welche zum SQUID führen, bilden einen geschlossenen supraleitenden Stromkreis. Dieser Stromkreis bildet mit der Einkoppelspule am SQUID einen supraleitenden Flusstransformator, in dem der magnetische Fluss eine Erhaltungsgröße darstellt. Jede Modulation des magnetischen Flusses, hervorgerufen beispielsweise durch die

DPO-Bewegung, führt zur Induktion eines Abschirmstroms in der Einkoppelspule des SQUIDs. Dieses arbeitet somit als effizienter Fluss-Spannungs-Wandler und verstärkt mit Hilfe einer angeschlossenen Elektronik das detektierte Signal. Die genaue Arbeitsweise eines SQUIDs kann zum Beispiel in [Cla04] nachgelesen werden.

Die räumliche Trennung zwischen Aufnehmerspule und SQUID erklärt auch die besondere Wichtigkeit des supraleitenden Niobzylinders, in welchem sich der Probenhalter befindet. Ohne diese Abschirmung gegen externe magnetische Felder, würde auch jede ungewollte elektromagnetische Strahlung von außen zur Flussmodulation und somit zum detektierten Signal beitragen.

Mikrostrukturierte Aufnehmerspule

In Abschnitt 3.2.2 wurde die monolithische Bauform des Probenhalters und die daraus resultierenden Vorteile angesprochen. Bei der Konzeption der induktiven Detektion wurde dieser Ansatz weiter verfolgt.

Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, wird für die induktive Detektion eine Feldspule benötigt, welche das äußere Magnetfeld erzeugt, dessen Variation durch die DPO-Bewegung von der Aufnehmerspule registriert wird. Anstatt einer separaten Feld- und Aufnehmerspule sind bei dem verwendeten Design beide Spulen vereint. Dies ermöglicht, dass zur kapazitiven Anregung oder Detektion der DPO-Schwingung weiterhin die Kopfelektrode benutzt werden kann.

Realisiert wird dieser Ansatz mit einer mikrostrukturierten Spule, welche beide Aufgaben vereint. Abbildung 3.15 zeigt eine schematische Zeichnung des Spulenchips.

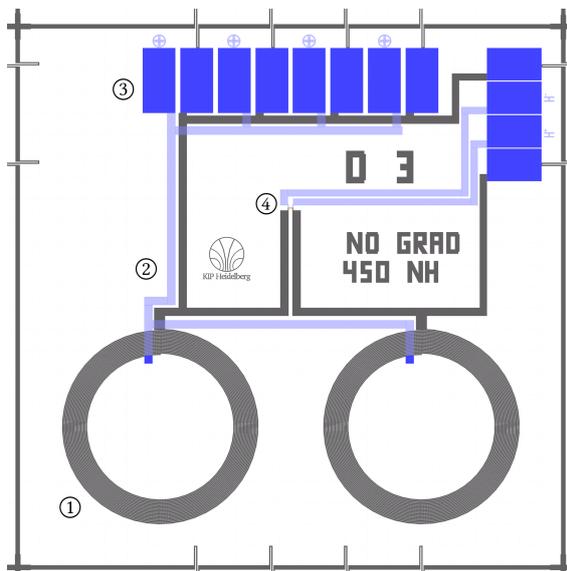


Abb. 3.15: Schematische Zeichnung des Spulenchips. Die vier verschiedenen Lagen sind mit unterschiedlichen Farben gekennzeichnet. Die untere Nioblage ① ist dunkelgrau dargestellt und enthält unter anderem die gradometrisch gewickelte Spule. Blaugrau dargestellt ist die obere Nioblage ②, welche nur an den dunkelblau gekennzeichneten Flächen ③ elektrischen Kontakt mit der unteren Nioblage hat. Etwas oberhalb des Zentrums befindet sich der Dauersstromschalter ④, welcher in der Zeichnung orange eingefärbt ist.

Farblich gekennzeichnet sind vier verschiedene mikrostrukturierte Lagen. Die erste Nioblage (grau) enthält die Spule, Verbindungs- und Zuleitungen, sowie eine chi-

pindividuelle Kennzeichnung. Hellblau ist die zweite Nioblage gekennzeichnet. Sie enthält die Bondpads für die Verbindung zu den Zuleitungen für Feldstrom und den Heizer des Dauerstromschalters (rechts), sowie für die Verbindung zum SQUID (oben). Diese Bondpads sind mehrfach ausgeführt und parallel geschaltet, um bei der Platzierung des SQUIDs auf der Messingbrücke einen gewissen Spielraum zu haben und gleichzeitig die Bonddrähte zwischen SQUID und Spulenchip möglichst kurz zu halten. An den dunkelblau dargestellten Bereichen sind die beiden Nioblagen elektrisch über so genannte *Vias* verbunden, während sie auf der restlichen Fläche durch eine Isolationslage aus 300 nm dicken SiO_x voneinander isoliert sind. Der für den Dauerstromschalter benötigte Heizer aus Gold-Palladium befindet sich etwas oberhalb des Zentrums des Chips. Details der verwendeten Mikrofabrikation wurden beispielsweise in [Pie12] dargestellt.

Der Chip wurde modular designet, was bedeutet, dass wahlweise gradiometrisch oder nicht-gradiometrisch gewickelte Spulen auf unterschiedlichen Chips prozessiert werden können, ohne das übrige Design zu verändern. Dies ist vorteilhaft, da, wie in Abbildung 3.5 ersichtlich, bei den DPO-Schwingungen Torsionsmoden und Biegemoden vorkommen. Diese variieren das Magnetfeld je nach Bewegung des DPO-Kopfes unterschiedlich. Um einen additiven Beitrag des Kompensationsstroms in beiden Teilen der Aufnehmerspule zu erhalten, sind bei den Torsionsmoden gradiometrisch gewickelte und bei den Biegemoden nicht-gradiometrisch gewickelte Spulen notwendig. Des weiteren ermöglicht das modulare Design optional auch Spulen mit anderen Windungszahlen und somit anderen Induktivitäten zu wählen, welche für SQUIDs mit unterschiedlichen Einkoppelinduktivitäten geeignet sind.

Die Induktivität der Spule ist an die Einkoppelinduktivität des verwendeten SQUIDs⁷ angepasst. Die Induktivität planarer Spulen berechnet sich nach [Moh99]

$$L_{\text{ges}} = \frac{\mu_0 n^2 d_{\text{avg}} c_1}{2} \left(\ln \left(\frac{c_2}{\rho} \right) + c_3 \rho + c_4 \rho^2 \right). \quad (3.9)$$

Hierbei steht n für die Windungszahl und $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ N/A}^2$ für die Vakuumpermeabilität. Der mittlere Spulendurchmesser $d_{\text{avg}} = 0,5(d_{\text{out}} + d_{\text{in}})$ hängt vom Außen- und vom Innendurchmesser $d_{\text{out}}, d_{\text{in}}$ der Spule ab, genau wie der Füllfaktor $\rho = (d_{\text{out}} - d_{\text{in}})/(d_{\text{out}} + d_{\text{in}})$. Die Koeffizienten c_1 bis c_4 sind geometrieabhängig. Für die Geometrie einer kreisförmigen Planarspule ergibt sich $c_1 = 1,00$, $c_2 = 2,46$, $c_3 = 0$ und $c_4 = 0,20$. Zu beachten ist, dass das Design eine Parallelschaltung von zwei Spulen mit identischer Geometrie und somit identischer Induktivität L_i enthält. Die gewünschte Induktivität ist mit der Einkoppelinduktivität des verwendeten SQUIDs mit $L_{\text{SQ}} = 450 \text{ nH}$ vorgegeben. Da der Außendurchmesser mit $d_{\text{out}} = 1,8 \text{ mm}$ mit der DPO-Kopfhöhe vorgegeben ist und sich der Innendurchmesser $d_{\text{in}} = d_{\text{out}} - 2np$ berechnen lässt, wobei p der Mitte-Mitte-Abstand der Bahnen ist, kann Gleichung 3.9

⁷C6L1, Hersteller: Magnicon, Berlin, Deutschland.

nach n aufgelöst werden und ergibt bei einem Mitte-Mitte-Abstand von $p = 13 \mu\text{m}$ die Windungszahl $n=18$.

Probenhalter mit induktiver Detektion

Der bereits in Abschnitt 3.2.2 vorgestellte Probenhalter kann für die induktive Messung modular erweitert werden.

Abbildung 3.16 zeigt eine dreidimensionale Zeichnung des Probenhalters. Bildabschnitt a) zeigt zum Vergleich die bereits bekannte Variante, mit der die DPO-Bewegung kapazitiv detektiert werden kann. Oberhalb des DPO-Kopfes befindet sich eine etwa 2 mm tiefe Aussparung und seitlich zwei Gewindebohrungen. Wie in Bildab-

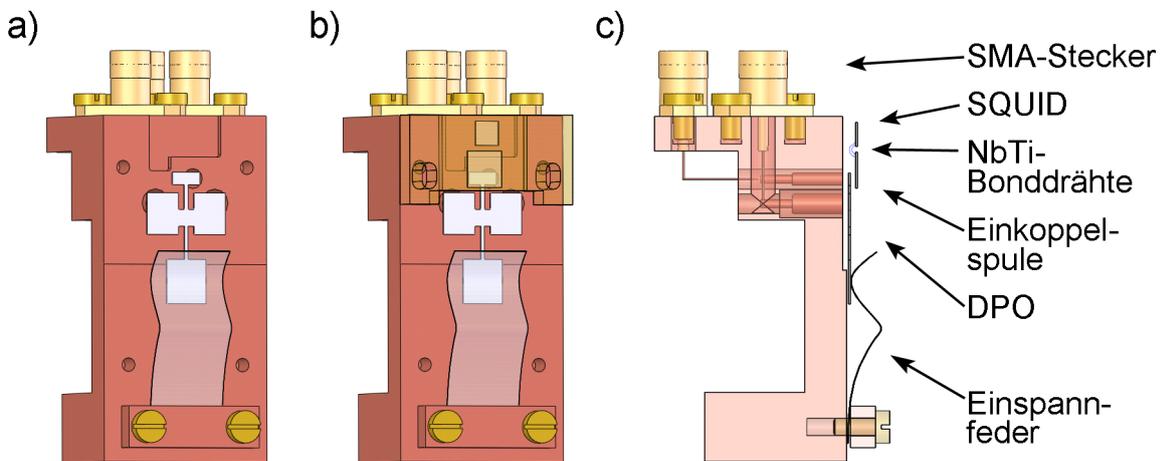


Abb. 3.16: Dreidimensionale Zeichnung des Probenhalters. Bildabschnitt a) zeigt den Aufbau wie er für kapazitive Anregung und Detektion verwendet werden kann. Bildabschnitt b) zeigt den Chip mit mikrostrukturierter Aufnehmerspule und das SQUID, welche für die induktive Detektion gegenüber den Elektroden auf der anderen Seite des DPOs angebracht werden können. Die Seitenansicht in Bildabschnitt c) zeigt, dass ausschließlich der DPO-Fuß Kontakt zum Probenhalter hat. Der Abstand zwischen dem übrigen DPO und dem Probenhalter ist zur klareren Ansicht vergrößert dargestellt.

schnitt b) zu sehen ist, kann an den Probenhalter eine Brücke aus Messing angebracht werden. Auf der Unterseite der Brücke sind der Chip mit der mikrostrukturierten Aufnehmerspule und das SQUID angebracht, was in der Abbildung zu erkennen ist, da die Messingbrücke transparent dargestellt wird. Bildabschnitt c) zeigt eine Seitenansicht des Probenhalters als Schnittansicht. In der Schnittansicht sind die Elektroden gut ersichtlich, die sich hinter den Flügeln und dem Kopf des DPOs befinden, welcher von der Einspannfeder nur an seinem Fuß auf den Probenhalter

gedrückt wird, ansonsten aber frei steht. Auf der gegenüberliegenden Seite des Kopfes befindet sich die untere Hälfte des Chips mit der Aufnehmerspule, welche über Bonddrähte mit dem SQUID verbunden ist. Die Messingbrücke ist der Übersicht halber nicht dargestellt.

Der mikrostrukturierte Chip wird so positioniert, dass sich die beiden darauf befindlichen Aufnehmerspulen genau oberhalb des DPO-Kopfes befinden, was in Abbildung 3.17 dargestellt ist. Bildabschnitt a) zeigt eine Zeichnung der Draufsicht auf Spulenchip und SQUID, wie sie über dem DPO ausgerichtet sind. Der Übersicht halber sind beide transparent dargestellt. Der Abstand zwischen Spule und DPO-Oberfläche beträgt etwa 0,5 mm. Auf der linken Seite des Chips befinden sich vier Bondpads, die mit Aluminium-Bonddrähten mit Kupferbahnen verbunden sind.

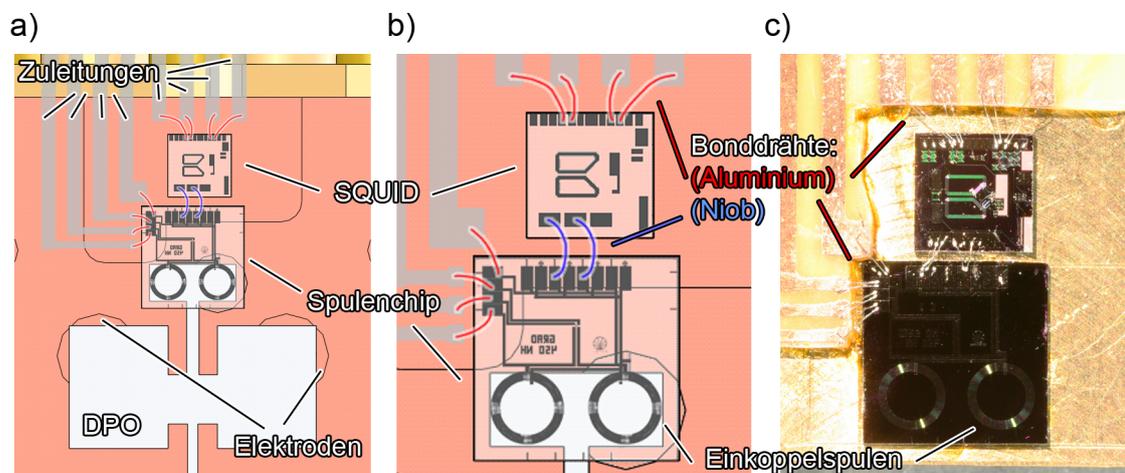


Abb. 3.17: Bildabschnitt a) zeigt eine Zeichnung der Aufsicht auf Aufnehmerspule und SQUID welche sich oberhalb des DPO-Kopfes befinden. Der Übersicht halber sind Halterung und Platinsubstrat gar nicht und Spule sowie SQUID transparent dargestellt. Bildabschnitt b) zeigt eine Ausschnittsvergrößerung von Spulenchip und SQUID. Der Spulenchip und das SQUID sind mit Aluminium-Bonddrähten (rot) mit Zuleitungen verbunden, welche sich auf einer Platine befinden. Zwischen SQUID und Spulenchip befinden sich NbTi-Bonddrähte (blau). Bildabschnitt c) zeigt eine horizontal gespiegelte Fotografie der Platine samt Spulenchip und SQUID, hier noch mit ausschließlich Aluminium-Bonddrähten.

Diese werden benötigt, um vor der Messung den Dauerstrom zu präparieren und den Dauerstromschalter zu betätigen. Auch das SQUID besitzt Bondpads, die über Aluminium-Bonddrähte mit weiteren Kupferbahnen verbunden sind, um es mit der dazugehörigen Elektronik zu verbinden. Alle Aluminium-Bonddrähte sind in der Zeichnung rot dargestellt. Wie zuvor erwähnt, befindet sich im Probenhalter eine Aussparung, damit die bogenförmigen Bonddrähte den Probenhalter nicht berühren oder beim Einbau der Messingbrücke berührt werden. Die Verbindung zwischen Spu-

lenchip und SQUID wird mit Niob-Titan-Drähten hergestellt, die in der Zeichnung blau dargestellt werden. Der Grund für die Wahl von Niob-Titan anstatt Aluminium ist die höhere Sprungtemperatur ($T_{c,NbTi} \approx 9,5 \text{ K} > T_{c,Al} = 1,2 \text{ K}$), was es erlaubt die induktive Detektionsmethode auch oberhalb von $T_{c,Al}$ zu verwenden.

Bildabschnitt b) zeigt eine Ausschnittsvergrößerung. Die in blau eingezeichneten NbTi-Drähte zwischen den Bondpads von Spulenchip und SQUID stammen aus einem Multifilamentdraht. In einem solchen befinden sich etwa 50 Filamente, die in einer Kupfermatrix eingebettet sind. Mit Hilfe von konzentrierter Salpetersäure wurden die Filamente, deren Durchmesser nur wenige μm beträgt, herausgelöst. Nach dem Ultraschallverschweißen der Filamente auf den Bondpads von Spulenchip und SQUID wurden diese mit Vakuumpfett fixiert, um etwaige Relativbewegungen zu unterdrücken, welche zu einem ungewollten Rauschen im Messsignal führen würden. Bildabschnitt c) zeigt eine Fotografie der Messingbrücke mit aufgeklebtem Chip und SQUID. Man erkennt die Bonddrähte, die jeweils paarweise mit den Kupferbahnen verbunden sind. Die Kupferbahnen selbst, befinden sich auf einer Platine an deren oberen Ende (nicht dargestellt) die Zuleitungsdrähte fest gelötet sind.

3.2.4 Messprinzip

Im Folgenden wird erläutert, auf welche Weise die innere Reibung und die relative Schallgeschwindigkeitsänderung temperaturabhängig bestimmt werden können. Zuerst wird die Messung von Resonanzkurven beschrieben, bevor anschließend erklärt wird, wie man mit diesem Wissen die gesuchten Messgrößen auch kontinuierlich ermitteln kann.

Einzelmessung

Die Bewegungsgleichung einer erzwungenen gedämpften Schwingung, auf die eine periodische Kraft $F_a = F_0 \cdot \cos \omega t$ wirkt, ist

$$K \cdot e^{i\omega t} = \ddot{z} + 2\gamma\dot{z} + \omega_0^2 z, \quad (3.10)$$

wobei $K = F_0/m$ und $\omega_0^2 = D/m$ ist. Mit D wird die Federkonstante der Feder und mit γ die Dämpfung bezeichnet, die über $2\gamma = Q^{-1}\omega_0$ mit der inneren Reibung verknüpft ist. Als Lösung dieser inhomogenen komplexen Differentialgleichung erhält man mit dem Ansatz $z = A \cdot e^{i\omega t}$ die komplexe Amplitude mit dem Realteil

$$A \cos \phi = \frac{K}{4\pi^2} \frac{Q^2 (f_0^2 - f^2)}{(f_0^2 - f^2)^2 Q^2 + f_0^2 f^2} \quad (3.11)$$

und dem Imaginärteil

$$A \sin \phi = -\frac{K}{4\pi^2} \frac{Q f_0 f}{(f_0^2 - f^2)^2 Q^2 + f_0^2 f^2}. \quad (3.12)$$

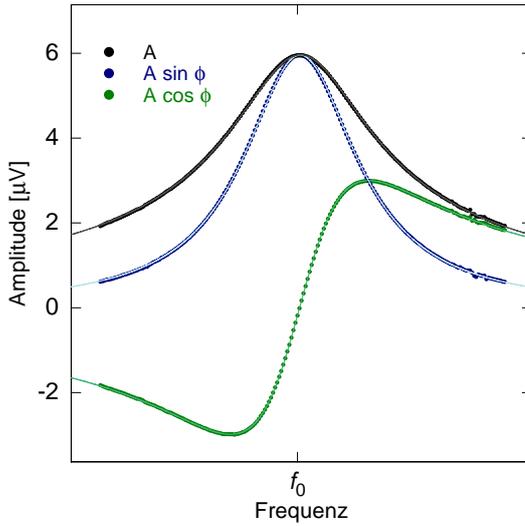


Abb. 3.18: Resonanzkurven. Dargestellt ist die reelle Amplitude A als Funktion der Frequenz. Diese berechnet sich aus dem Realteil $A \cos \phi$ und dem Imaginärteil $A \sin \phi$ als Lösung der Bewegungsgleichung (3.10). Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen gemäß (3.11), (3.12) und (3.13).

Daraus ergibt sich mit $\tan \phi = A \sin \phi / A \cos \phi$ die Phase.
Die reelle Amplitude

$$A = \frac{K}{4\pi^2} \frac{Q}{\sqrt{(f_0^2 - f^2)^2 Q^2 + f_0^2 f^2}} \quad (3.13)$$

erhält man mit $|A| = \sqrt{(A \cos \phi)^2 + (A \sin \phi)^2}$. Sie besitzt die Form einer Lorentzkurve. Bei hohen Güten kann der Unterschied zwischen der Resonanzfrequenz f_0 des freien ungedämpften, des erzwungenen gedämpften $f_e = f_0 \sqrt{1 - 0,5 Q^{-2}}$ sowie des freien gedämpften Oszillators $f_f = f_0 \sqrt{1 - Q^{-2}}$ vernachlässigt werden.

Abbildung 3.18 zeigt eine gemessene Resonanzkurve, sowie Real- und Imaginärteil in Abhängigkeit von der Frequenz. Mit Hilfe von Anpassungen gemäß (3.11), (3.12) und (3.13) an die gemessenen Daten lassen sich f_0 und Q^{-1} bestimmen. Führt man diese Messungen bei verschiedenen Temperaturen durch, lässt sich die innere Reibung temperaturabhängig bestimmen. Die relative Schallgeschwindigkeitsänderung $\delta v/v$ lässt sich über die Änderung der Resonanzfrequenz f_0 bestimmen. Mit $f_0 \propto v$ gilt unter Vernachlässigung der thermischen Expansion

$$\frac{\delta f_0}{f_0} = \frac{f_0(T) - f_0(T_0)}{f_0(T_0)} = \frac{v(T) - v(T_0)}{v(T_0)} = \frac{\delta v}{v}, \quad (3.14)$$

wobei T_0 eine beliebige Referenztemperatur ist und $\delta v \ll v$ angenommen wurde.

Kontinuierliche Messung

Die im vorherigen Abschnitt vorgestellte Methode der Bestimmung von Q^{-1} und $\delta v/v$ ist prinzipiell ausreichend, um die gewünschten Messergebnisse zu erhalten. Allerdings ist diese Methode bei Eigenmoden mit hoher Güte unpraktikabel, da sie sehr

zeitaufwendig ist.

Die Güte Q ist der Kehrwert der inneren Reibung und kann über den Energieverlust ΔE pro Schwingungsperiode und die gesamte Schwingungsenergie E definiert werden

$$Q = 2\pi \frac{E}{\Delta E} . \quad (3.15)$$

Bei einer gedämpften harmonischen Schwingung ist die Beziehung zwischen innerer Reibung und Einschwingzeit τ bei kleiner Dämpfung [Sku54]

$$Q^{-1} \approx \frac{1}{\pi f_0 \tau} . \quad (3.16)$$

In amorphen Festkörpern hat die innere Reibung im Temperaturbereich weniger Kelvin einen Plateaubereich mit einem Wert von typischerweise einigen 10^{-4} . Wie in Kapitel 2.3.6 beschrieben, reduziert sich dieser Wert nach (2.60) mit sinkender Temperatur. Hat eine Schwingungsmode eine Güte von 10^5 bei $f_0 = 4500$ Hz so ergibt sich eine Einschwingzeit τ von etwa 7 s. Will man diese Resonanzkurve mit etwa 100 Punkten messen und wartet nach jeder Frequenzänderung eine Zeit von 3τ , so dauert die gesamte Messung etwa eine halbe Stunde. Falls sichergestellt werden kann, dass eine kontinuierliche Messung korrekte Ergebnisse erzielt, ist diese den Einzelmessungen vorzuziehen, da in einem kürzeren Zeitraum ein größerer Temperaturbereich vermessen werden kann. Dies erhöht die Wahrscheinlichkeit weniger stark von äußeren Einflüssen betroffen zu sein, welche die Messungen stören könnten. Mit der im nächsten Abschnitt vorgestellten kontinuierlichen Messmethode, lassen sich die relative Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung gleichzeitig ermitteln, während die Temperatur variiert wird. Auch wenn sich mit der kontinuierlichen Messmethode beide Messgrößen gleichzeitig ermitteln lassen, erfolgt zum besseren Verständnis die Erläuterung sukzessive für die Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung.

Schallgeschwindigkeit Abbildung 3.19 zeigt in der linken Bildhälfte die Amplitude einer Resonanzkurve in Abhängigkeit von der Frequenz und in der rechten Bildhälfte die dazugehörige Phasendifferenz ϕ zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs. Wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, können mit dem verwendeten Lock-In-Verstärker beide Messgrößen gleichzeitig ermittelt werden. Man erkennt, dass die Phasendifferenz einen Wert von $\phi = 90^\circ$ annimmt, wenn die Amplitude im Resonanzfall ihren Maximalwert erreicht. Um die relative Schallgeschwindigkeitsänderung kontinuierlich zu messen, musste also die Anregungsfrequenz $f_0/2$ immer so einstellen, dass die Phasendifferenz stets $\phi = 90^\circ$ beträgt. Hierfür wurde ein digitaler PID-Regler im Messprogramm implementiert.

Abbildung 3.20 zeigt eine Messung der Temperaturabhängigkeit der Resonanzfrequenz $f_0(T)$, wie sie mit Hilfe des PID-Reglers gemacht wurde. In der unteren Bild-

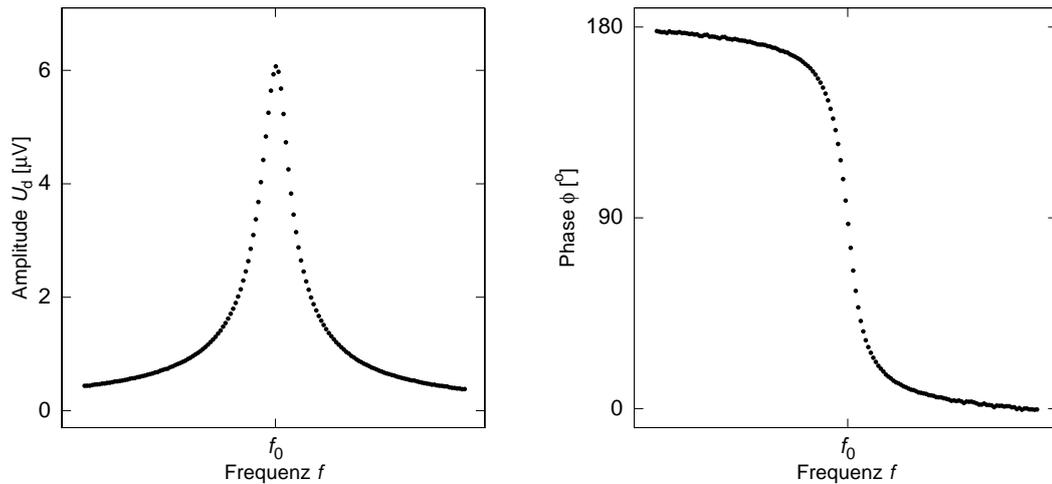


Abb. 3.19: In der linken Bildhälfte ist die lorentzförmige Resonanzkurve im Frequenzbereich um f_0 dargestellt, wo sie ein Maximum aufweist. In der rechten Bildhälfte ist die Phasendifferenz zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs im selben Frequenzbereich um f_0 dargestellt. Bei der Frequenz $f = f_0$ beträgt der Unterschied $\phi = 90^\circ$.

hälfte ist die (doppelte) Anregungsfrequenz (abzüglich einer Referenzfrequenz f_{max}) dargestellt. Die Anregungsfrequenz $f/2$ ist gleichzeitig die Stellgröße des PID-Reglers. Als Regelgröße dient die Phasendifferenz ϕ , welche in der oberen Bildhälfte für den selben Temperaturbereich dargestellt ist. Um immer genau auf Resonanz zu bleiben, beträgt die Führungsgröße konstant $\phi = 90^\circ$. Im Temperaturbereich unter etwa 90 mK, wo die Schallgeschwindigkeit mit steigender Temperatur streng monoton zunimmt, muss der Regler die Resonanzfrequenz ständig vergrößern, was sich darin zeigt, dass die Phasendifferenz ϕ geringfügig unter dem Sollwert von $\phi = 90^\circ$ liegt. Diese systematische Abweichung entspricht bezogen auf f weniger als 0,00015 Hz und ist hier tolerierbar. Oberhalb von etwa 90 mK, steigt die Schallgeschwindigkeit mit steigender Temperatur und der Regler muss die Resonanzfrequenz ständig verringern, weshalb in diesem Temperaturbereich die Phasendifferenz ϕ geringfügig über dem Sollwert liegt. Man erkennt weiterhin, dass sich die Abweichung zwischen Ist- und Sollwert nicht mehr weiter vergrößert (oberhalb von etwa 130 mK), wenn die Änderung der Resonanzfrequenzänderung verschwindet ($\partial^2 f_0 / \partial T^2 = 0$), da das Integrationsglied des PID-Reglers kontinuierliche Abweichungen zwischen Ist- und Sollwert kompensiert.

Um zu gewährleisten, dass die Probe immer thermalisiert ist, wird auch die Temperatursteuerung mit Hilfe des Reglers gesteuert. Nur wenn die Differenz zwischen Ist- und Sollwert kleiner als ein einstellbarer Schwellwert ϕ_{th} ist ($|90^\circ - \phi| \leq \phi_{\text{th}}$), wird die nächste Temperatur eingestellt. Sollte ϕ_{th} einmal überschritten werden, bleibt die Mischkammer des Kryostat solange auf derselben Temperatur, bis ϕ_{th} eine gewisse Mindestdauer ununterbrochen unterschritten bleibt. Dass die Probe dank dieser

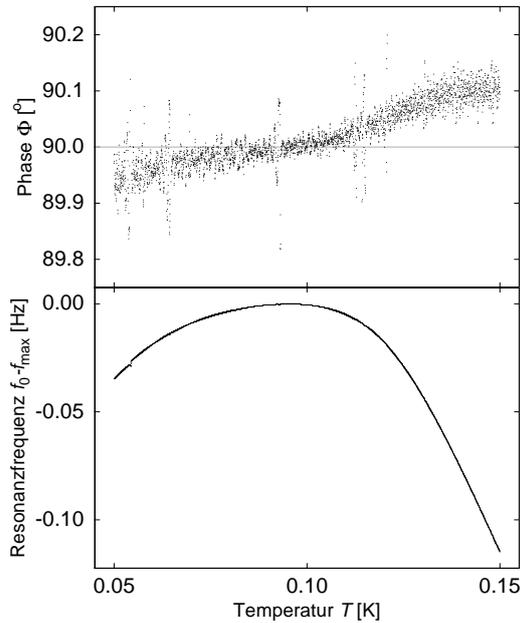


Abb. 3.20: In der unteren Bildhälfte ist die Veränderung der Resonanzfrequenz f_0 im Temperaturbereich zwischen 50 und 150 mK dargestellt. Um die Resonanzfrequenz f_0 und somit nach (3.14) die Schallgeschwindigkeitsänderung kontinuierlich zu messen, wird die Frequenz der Anregung als Stellgröße eines PID-Reglers ständig angepasst. Die dazugehörige Regelgröße ist die Phasendifferenz ϕ zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs, welche in der oberen Bildhälfte dargestellt ist. Die Führungsgröße beträgt konstant $\phi = 90^\circ$ und ist ebenfalls eingezeichnet.

Temperaturregelung ausreichend Zeit zum Thermalisieren hatte, wird dadurch bestätigt, dass es auch bei tiefsten Temperaturen eine gute Übereinstimmung zwischen den Messergebnissen der kontinuierlichen Messung und denen der Einzelmessungen gibt. Dies gilt sowohl für die Messungen der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung (siehe Abbildung 4.20), als auch für die der inneren Reibung (Abbildung 4.23).

Innere Reibung Um die innere Reibung kontinuierlich zu messen, wird prinzipiell dieselbe Vorgehensweise benutzt wie zur Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung, nur dass andere Größen als Stell- und Regelgröße dienen, wenn mit konstanter DPO-Auslenkung gemessen werden soll. Der Vorteil bei der Messung einzelner Resonanzkurven ist, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, dass man anhand der Kurvenform erkennen kann, ob man im linearen Bereich (siehe Abschnitt 4.1.3) gemessen hat, sowie ob mögliche konstante Phasen- und Amplitudenverschiebungen auftreten. Da dies bei der kontinuierlichen Messung nicht möglich ist, ist es von Vorteil die kontinuierliche Messung bei konstanter DPO-Auslenkung ξ anstatt konstanter Anregung U_0 durchzuführen.

Um dies zu erreichen, wird ein weiterer PID-Regler benötigt, welcher als Regelgröße die detektierte Amplitude U_d hat, welche nach (3.8) proportional zur DPO-Auslenkung ξ ist. Als Stellgröße dient die Anregung U_0 . Nach (3.5) ist das Quadrat der Anregung proportional zur Kraft, die zwischen Anregungselektrode und DPO herrscht. Mit Hilfe des *Hookeschen Gesetzes* ergibt sich

$$U_0^2 \propto F \xi \propto U_d . \quad (3.17)$$

Zur Ermittlung der inneren Reibung wird (3.13) an der Stelle $f = f_0$ ausgewertet (da der andere, vorher beschriebene PID-Regler ständig die Anregungsfrequenz nachregelt, wird sichergestellt, dass jederzeit $f = f_0$ gilt) und wir erhalten unter Berücksichtigung von $A \propto U_d$

$$Q^{-1} \propto \left(f_0^2 U_d \left(\frac{U_0(T^*)}{U_0(T)} \right)^2 \right)^{-1}. \quad (3.18)$$

Der quadratische Term in 3.18 mit der Stellgröße $U_0(T)$ ersetzt als dynamische Größe die Detektionsamplitude U_d aus 3.17, da U_d als Regelgröße während der gesamten Messung annähernd konstant bleibt. Da mit dieser Methode die innere Reibung nur bis auf einen konstanten Faktor bestimmt werden kann, wird eine Einzelmessung der Resonanz bei einer beliebigen Temperatur T^* als Absolutmessung ($Q^{-1}(T^*)$) benötigt. Auf diese Weise kann die benötigte Proportionalitätskonstante bestimmt werden, um Absolutwerte der inneren Reibung zu erhalten.

Abbildung 3.21 zeigt eine Messung der Anregung U_0 und Detektionsamplitude U_d in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Messdaten stammen aus derselben Messung wie die aus Abbildung 3.20, hier im Temperaturbereich zwischen 120 mK und 250 mK. In der unteren Bildhälfte ist die Anregungsspannung dargestellt. Sie ist gleichzei-

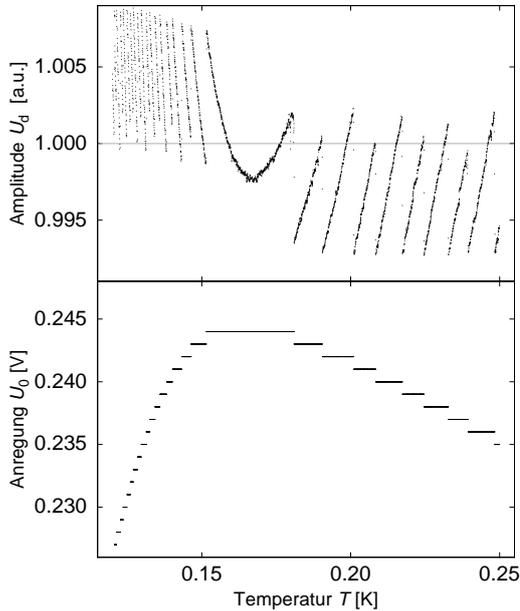


Abb. 3.21: In der unteren Bildhälfte ist die Anregungsspannung U_0 im Temperaturbereich zwischen 120 und 250 mK dargestellt. Um die innere Reibung Q^{-1} bei konstanter DPO-Auslenkung kontinuierlich zu messen, muss nach 3.18 die Anregung U_0 als Stellgröße eines weiteren PID-Reglers angepasst werden, sodass die detektierte Amplitude U_d konstant bleibt. Diese dient somit als Regelgröße und ist in der oberen Bildhälfte dargestellt. Als Führungsgröße muss ein Wert gewählt werden, dass der DPO nicht im nichtlinearen-Bereich betrieben wird (siehe 4.1.3).

tig die Stellgröße des PID-Reglers. Der unstetige Verlauf ergibt sich dadurch, dass das kleinste Inkrement der Anregungsspannung des verwendeten Funktionsgenerators 1 mV beträgt. Als Führungsgröße muss ein Wert gewählt werden, bei dem sich der DPO nicht im nichtlinearen Bereich befindet (siehe 4.1.3). Als Regelgröße dient

die Detektionsamplitude U_d , welche in der oberen Bildhälfte für den selben Temperaturbereich dargestellt ist. Die inkrementelle Veränderung der Anregungsspannung zeigt sich auch hier. Weichen Ist- und Sollwert ausreichend weit voneinander ab, wird die Stellgröße (stufenartig) verändert, woraufhin sich die Differenz sprunghaft reduziert. Die letztlich ermittelte Größe der inneren Reibung Q^{-1} wird durch die Veränderung der Anregungsspannung in verhältnismäßig groben Stufen nicht beeinflusst, da sich nach (3.18) dieser Einfluss von der Detektionsamplitude U_d berücksichtigt wird.

Im Temperaturbereich unter etwa 170 mK muss der Regler die Anregungsamplitude mit steigender Temperatur ständig vergrößern, während die Detektionsamplitude wie erwartet systematisch geringfügig über dem Sollwert liegt. Oberhalb von etwa 170 mK ist es umgekehrt.

Die soeben vorgestellten Methoden zur Ermittlung der Schallgeschwindigkeitsänderung und der inneren Reibung kommen bei der kontinuierlichen Messung gleichzeitig zum Einsatz, sodass beide Größen parallel ermittelt werden. Ein Vergleich der Ergebnisse, welche mit Hilfe von Einzelresonanzmessungen gemacht wurden mit denen welche mittels der kontinuierlichen Messungen gewonnen wurden, finden sich in den Abbildungen 4.20 und 4.23 im folgenden Kapitel.

3.3 Thermometrie

Um mehr über die elastischen Eigenschaften des metallischen Glases zu lernen, wurden die im folgenden Kapitel vorgestellten Messungen der Schallgeschwindigkeit und der inneren Reibung temperaturabhängig durchgeführt. Daher ist es unerlässlich zu jedem Zeitpunkt eine verlässliche Temperaturinformation zu haben. Im Folgenden wird deshalb vorgestellt auf welche Weise die Temperatur ermittelt wurde, bei welcher die Experimente durchgeführt wurden, nachdem zunächst auf die Thermalisierung der verwendeten Probe eingegangen wird.

3.3.1 Thermalisierung der Probe

An derselben Experimentierplattform, an der der Probenhalter angebracht ist, ist auch ein Kohlethermometer montiert, mit welchem die Temperatur während der Durchführung der Experimente ermittelt wurde. Eine der Voraussetzungen dafür, dass die Temperatur Probe mit der Temperatur des Thermometers übereinstimmt, ist, dass man der Probe ausreichend Zeit lässt zur Temperatur der Experimentierplattform zu relaxieren. Des weiteren müssen Wärmeeinträge in die Probe vernachlässigbar klein sein. Im Folgenden wird daher die Wärmeleitfähigkeit innerhalb der Probe abgeschätzt und anschließend mit extrinsischen und intrinsischen Wärmeträgern verglichen.

Wärmeleitfähigkeit: Die Variante den DPO mittels zweier Schrauben zwischen den Probenhalter und ein kleines Kupferklötzchen zu klemmen, hat sich bei vorangegangenen Experimenten als ungünstig erwiesen, da das Kupferklötzchen unter der Spannung der Schrauben langsam deformiert wurde, so dass die Fixierung des DPOs langsam nachließ [Hei02]. Da der Probenhalter auch für Experimente mit DPOs aus dielektrischem Glas benutzt wurde, ist die Schraubenfixierung auch deshalb ungeeignet, da eine zu unterschiedliche thermische Kontraktion der Einspannung und des DPOs zur Zerstörung des DPOs führen könnte. Stattdessen wurde in den hier diskutierten Messungen, wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, der DPO an seinem Fuß mit einer CuBe-Feder gegen den Probenhalter gedrückt. Der Fuß des DPOs steht somit in gutem thermischen Kontakt zur Experimentierplattform.

Die Engstelle der Wärmeleitung innerhalb des DPOs stellt auf Grund seiner Geometrie das Bein dar. Dieses ist etwa $l=4,8$ mm lang und hat einen Querschnitt von etwa $A=0,117$ mm². Zusätzlich ist auf die Oberfläche des DPOs einseitig ein Kupfer-Gold Film von 1 μ m Stärke aufgesputtert. Die Wärmeleitfähigkeit berechnet sich somit aus dem Anteil durch das Bein des DPOs, der aus der amorphen Zirkonlegierung besteht, und durch die Oberflächenbeschichtung aus Kupfer und Gold. Die Wär-

meleitfähigkeit einer der Probe sehr ähnlichen Legierung $\text{Zr}_{52,2}\text{Ti}_5\text{Cu}_{17,9}\text{Ni}_{14,6}\text{Al}_{10}$ wurde bei tiefen Temperaturen gemessen und beträgt etwa $\lambda = 1 \cdot 10^{-5} \text{ W/mK}$ bei 10 mK [Rot13]. Die thermische Leitfähigkeit λ durch die Edelmetalloberfläche, lässt sich mit Hilfe des *Wiedemann-Franz'schen Gesetzes*

$$\lambda = \sigma L T \quad (3.19)$$

berechnen. Hier ist $L = 2,44 \cdot 10^{-8} \text{ V}^2/\text{K}^2$ die Lorenz-Zahl und σ die elektrische Leitfähigkeit der gesputterten Kupferschicht bei $T=10 \text{ mK}$. Mit einem angenommenen Wert des Restwiderstandsverhältnisses von $\text{RRR}=5$ beträgt sie $\sigma = 2,9 \cdot 10^8 \text{ } \Omega^{-1}\text{m}^{-1}$. Daraus ergibt sich eine thermische Leitfähigkeit von $\lambda \approx 0,07 \text{ W/m}\cdot\text{K}$ bei $T=10 \text{ mK}$. Anhand dieser Werte für die spezifischen Wärmeleitfähigkeiten und einem Querschnittsverhältnis von $235 \div 1$ zwischen DPO und Thermalisierungsschicht wird ersichtlich, dass der absolute Wärmefluss durch die Thermalisierungsschicht etwa 30 mal größer ist, als der Anteil der vom supraleitenden metallischen Glas getragen wird.

Mit diesen Wärmeleitfähigkeiten lässt sich der maximale Wärmeeintrag

$$\dot{Q} \leq \sum_i \frac{\lambda_i A_i \Delta T}{l} \quad (3.20)$$

berechnen, bei welchem die Temperaturdifferenz ΔT zwischen DPO und Probenhalter nicht größer als beispielsweise 1% ist. Mit den hier angenommenen Zahlen erhält man einen maximalen Wärmeeintrag in die Probe von $\dot{Q} \approx 0,8 \text{ pW}$ bei $T=10 \text{ mK}$.

Wärmeeinträge: Wärmeeinträge, die die Temperatur im DPO erhöhen könnten, können intrinsischer und extrinsischer Natur sein. Zu den intrinsischen Wärmeeinträgen gehört die dissipierte Leistung die durch die Schwingung des DPOs selbst verursacht wird. Für die dissipierte Leistung ergibt sich

$$P = \pi^3 m Q^{-1} \xi^2 f^3, \quad (3.21)$$

wobei m die Masse des bei der Schwingungsbewegung verzerrten Volumens des DPOs ist [Cla91]. Beispielsweise ergibt sich bei der AT 1-Mode bei einer Güte von $Q = 10^5$, einer Frequenz von $f=4500 \text{ Hz}$, einer Masse des DPO-Halses von $m = 3,4 \cdot 10^{-6} \text{ kg}$ und einer Auslenkung von $\xi = 0,12 \text{ nm}$ eine Leistungsdissipation von $P=1,4 \text{ aW}$. Die Auslenkung wurde hierfür über

$$\xi = \frac{U_d x^2 C_1}{U_b \varepsilon_0 A} \quad (3.22)$$

abgeschätzt, was sich aus (3.8) ergibt.

Zu den extrinsischen Wärmeeinträgen gehören Myonen, welche durch Reaktionen der

kosmischen Höhenstrahlung mit Atomen in der Atmosphäre entstehen und einen Teil ihrer Energie im DPO deponieren. Auf Meereshöhe beträgt der Myonenfluss etwa eins pro Quadratcentimeter Oberfläche und Minute [Yao06]. Eine Abschätzung [Net07] für die im hier diskutierten Experiment auftretenden Parameter ergibt eine dissipierte Leistung von $P < 0,5$ fW.

Ein weiterer extrinsischer Beitrag ist radioaktiver Untergrund aus Materialien der Umgebung, der seine Energie im DPO deponiert. Eine Abschätzung [Rot08], die anhand von Wärmeleitfähigkeitsmessungen durchgeführt wurde, ergibt eine dissipierte Leistung von $P < 0,1$ fW.

Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass es noch weitere nicht berücksichtigte Wärmeeinträge gibt, die einen Einfluss auf die DPO-Temperatur haben können. Die bei dieser Abschätzung berücksichtigten Beiträge sind zusammen etwa drei Größenordnungen kleiner als der oben abgeschätzte Wert, bei dem bei einer Badtemperatur von 10 mK ein Temperaturgradient von $100 \mu\text{K}$ im DPO erzeugt werden würde.

3.3.2 Fixpunktthermometer

Zur Bestimmung der Temperatur während der durchgeführten Messungen wurde ein Kohlethermometer benutzt. Dieses wurde zuvor mit Hilfe eines Rauschthermometers kalibriert. Obwohl ein Rauschthermometer prinzipiell ein Primärthermometer sein kann, wird es in der Praxis oft selbst anhand eines bekannten Temperaturpunktes kalibriert. Um diese Kalibrierung durchzuführen und das Ergebnis zu überprüfen wurde ein Fixpunktthermometer⁸ verwendet. Details zum Aufbau und der Funkti-

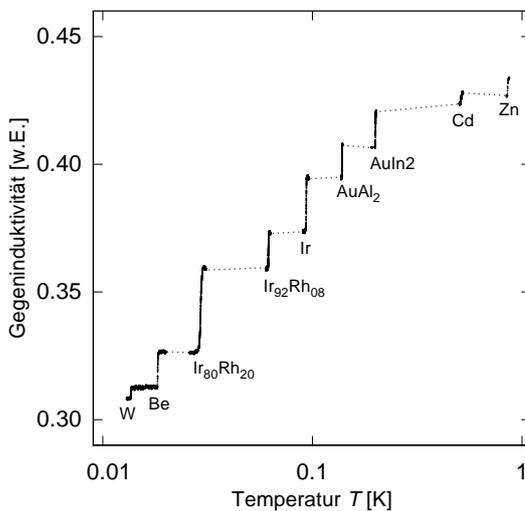


Abb. 3.22: Gegeninduktivität in Abhängigkeit von der Temperatur des Kohlethermometers vor dessen Neukalibrierung. Beim Durchschreiten jeder Sprungtemperatur der im Thermometer verbauten Supraleiter ändert sich die Gegeninduktivität.

onsweise dieses Thermometers finden sich in [Sch05, Net07].

⁸SRD1000, Prototyp 006, Hersteller: HDL, Leiden, Niederlande.

Die Phasenübergänge von neun im verwendete Fixpunktthermometer verbauten Supraleiter wurden vermessen. Abbildung 3.22 zeigt die Gegeninduktivität zwischen einer Anregungsspule und einer zehnteiligen Detektionsspule gefüllt mit verschiedenen Supraleitern. in Abhängigkeit von der Temperatur, welches das Kohlethermometer vor dessen Neukalibrierung anzeigte. Man erkennt, dass sich die Gegeninduktivität jedes Mal erhöht, wenn mit steigender Temperatur ein weiterer Phasenübergang durchschritten wird. Die gepunkteten Verbindungslinien dienen lediglich der optischen Führung. Alle hier gezeigten Fixpunkte können prinzipiell als Kalibrierungspunkt für das Rauschthermometer benutzt werden. Allerdings unterscheiden sie sich in einigen Aspekten, weshalb es mehr und weniger geeignete gibt.

Abbildung 3.23 zeigt den für die Kalibrierung des Rauschthermometers verwendeten Fixpunkt aus Iridium bei 98,9 mK. Dargestellt ist die gemessene Gegeninduktivität

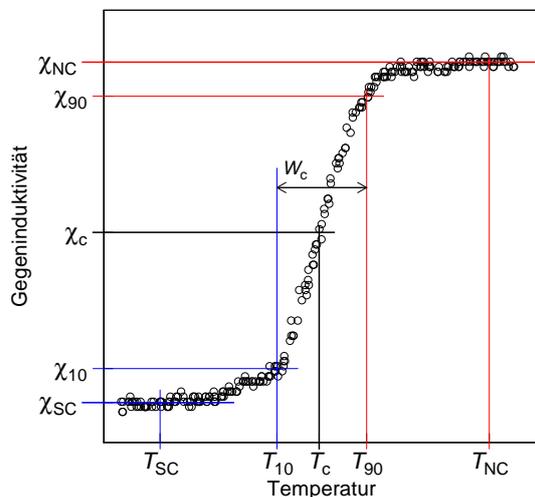


Abb. 3.23: Gemessene Gegeninduktivität des im Fixpunktthermometer verbauten Iridiums ($T_c=98,9$ mK) in Abhängigkeit von der Temperatur. Mit Hilfe der Gegeninduktivität χ_c die genau zwischen den Gegeninduktivitäten liegt, bei der der Supraleiter weit im supraleitenden (χ_{SC}) und normalleitenden (χ_{NC}) Temperaturbereich liegt, lässt sich die exakte Sprungtemperatur T_c ermitteln. Des weiteren kann die Breite des Fixpunktes W_c ermittelt werden (siehe Text).

in Abhängigkeit von der Temperatur. Folgende Methode ist die bei der Kalibrierung festgelegte Vorschrift zur Ermittlung der Sprungtemperatur T_c , auch wenn der Phasenübergang nicht unendlich steil ist. Misst man einen ausreichend großen Temperaturbereich um T_c , kennt man die Gegeninduktivität die ausreichend weit im supraleitenden χ_{SC} und ausreichend weit im normalleitenden χ_{NC} Bereich vorliegt. Die Sprungtemperatur T_c ist definiert als die Temperatur, bei der der Supraleiter 50 % des Phasenübergangs $\chi_c = (\chi_{NC} + \chi_{SC})/2$ durchschritten hat. Eine weitere den Fixpunkt charakterisierende Größe ist die Breite des Phasenübergangs W_c . Bezeichnet man die Temperatur, bei der die Gegeninduktivität 90 % von χ_{NC} beträgt mit T_{90} und entsprechend T_{10} , so beträgt die Breite des Phasenübergangs $W_c = T_{90} - T_{10}$. Sie ist ein Maß dafür, wie genau man die Temperatur des Phasenübergangs T_c ermitteln kann.

Der in Abbildung 3.23 dargestellte Fixpunkt stammt vom Phasenübergang des im Thermometer verbauten Iridium, welches pulverförmig mit einer Reinheit von 99,995 %

vorliegt. Seine Sprungtemperatur beträgt $T_c = 98,9 \pm 0,08$ mK. Die Ungenauigkeit ($0,2 \cdot W_c$) ergibt sich aus der gemessenen Breite des Phasenübergangs. Die Sprungtemperatur ($T_c = 98,9$ mK) dieses Fixpunkts dient der Kalibrierung des Rauschthermometers als Normtemperatur ($T_0 = 98,9$ mK).

3.3.3 Rauschthermometer

Wenngleich man mit Hilfe eines Fixpunktthermometers einzelne Temperaturpunkte sehr genau ermitteln kann, ist es für die Kalibrierung eines Widerstandsthermometers, wie des verwendeten Kohlethermometers, nur mäßig geeignet. Zum einen benötigt man relativ viel Zeit um einen Temperaturpunkt zu ermitteln. Zum anderen ist der Temperaturabstand zwischen den einzelnen Fixpunkten relativ groß, sodass eine Interpolation mit großer Unsicherheit verbunden ist. Außerdem müsste für den Temperaturbereich unterhalb der Sprungtemperatur des Supraleiters mit dem niedrigsten T_c eine Extrapolation vorgenommen werden, welche eine noch größere Unsicherheit aufweist.

Aus diesem Grund wurde mit Hilfe des Fixpunktthermometers ein Rauschthermometer kalibriert, welches im gesamten Temperaturbereich zwischen der Basistemperatur des Kryostaten bei einigen Millikelvin und mehreren Kelvin eingesetzt werden kann. Das verwendete Rauschthermometer besteht aus einem hochreinen Goldzylinder, welcher mit der Experimentierplattform verbunden ist. Die auf Grund der thermischen Bewegung der Elektronen entstehenden Magnetfeldfluktuationen werden induktiv detektiert. Dazu befindet sich um den Goldzylinder gewickelt eine Detektionsspule, welche zusammen mit der Einkoppelspule eines SQUIDs einen supraleitenden Flusstransformator bildet. Das SQUID dient als Fluss-Spannungs-Wandler und rauscharmer Verstärker. Eine genaue Beschreibung des Thermometers findet sich hier [Net07].

Rauschspektren dieses Thermometers, welche bei sechs verschiedenen Temperaturen mit Hilfe eines Analog-Digital-Wandlers aufgezeichnet wurden, sind in Abbildung 3.24 dargestellt. Die hier in einem Frequenzbereich zwischen 10 Hz und 3600 Hz gezeigten Spektren setzen sich jeweils aus einem Beitrag des für die Messung verwendeten SQUIDs $S_{\Phi, \text{SQ}}$ und dem Beitrag der Rauschquelle S_{Φ} zusammen. Der weiße Rauschbeitrag des SQUIDs liegt bei $S_{\Phi, \text{SQ}} = 2,9 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$.

Nach Johnson und Nyquist ist die spektrale Leistungsdichte der Spannungsfluktuation eines Widerstands R

$$S_U = \frac{\langle U^2 \rangle}{\Delta f} = 4k_B T R \quad (3.23)$$

frequenzunabhängig und hängt nur vom ohmschen Widerstand R und dessen Temperatur T ab [Joh28, Nyq28]. Hierbei ist Δf die Bandbreite, in der das Spannungsrauschen gemessen wird. Unter der Annahme, dass sich der Wert des ohmschen

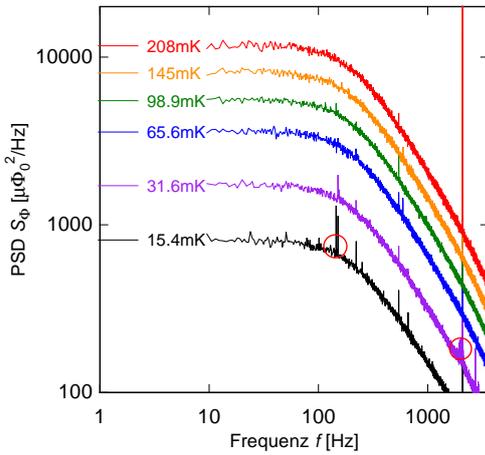


Abb. 3.24: Sechs verschiedene Rauschspektren, die bei den Sprungtemperaturen des Fixpunktthermometers aufgenommen wurden. Mit Hilfe roter Kreise sind exemplarisch Frequenzbereiche hervorgehoben, bei denen externe Störungen zum Rauschen beitragen.

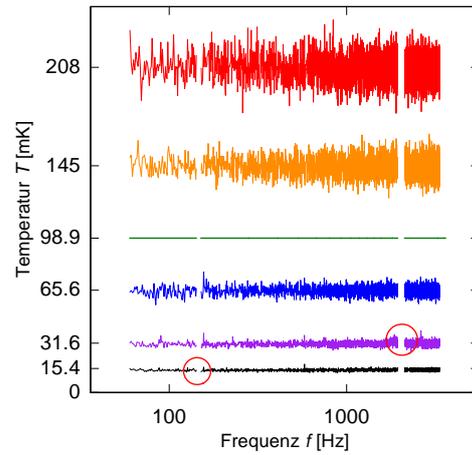


Abb. 3.25: Normierte Rauschspektren. Die links gezeigten Rauschspektren abzüglich eines weißen Rauschanteils dividiert durch das Normspektrum S_0 bei 98,9 mK (ebenfalls abzüglich des weißen Rauschens) multipliziert mit $T_0 = 98,9$ mK. Störfrequenzen wurden entfernt.

Widerstands unterhalb weniger Kelvin nicht mehr ändert, hängt die Leistungsdichte nur noch von der Temperatur ab. Die hier beobachteten Magnetfeldfluktuationen sind nur bei niedrigsten Frequenzen konstant und fallen zu höheren Frequenzen hin ab, da der Skin-Effekt hier eine Selbstschirmung bewirkt, was in den Spektren in Abbildung 3.24 gut zu erkennen ist. Neben dem Plateau und der anschließenden Reduktion bei höheren Frequenzen finden sich in den Spektren auch Beiträge externer Störungen, durch Kreise markiert, welche bei einzelnen Frequenzen den Rauschbeitrag dominieren.

Die Temperaturen, bei denen die gezeigten Rauschspektren aufgenommen wurden, entsprechen genau den Sprungpunkten der Supraleiter, welche im Fixpunktthermometer (siehe Abschnitt 3.3.2) vorhanden sind. Somit ist es nun möglich mit Hilfe eines Spektrums S_0 , welches bei einer bekannten Temperatur T_0 aufgenommen wurde, das Rauschthermometer zu kalibrieren. Dazu wird die temperaturabhängige Rauschleistung abzüglich des SQUID-Beitrags $S_{\Phi, \text{SQ}}$ bei jeder Temperatur durch das Normspektrum S_0 , wieder abzüglich des SQUID-Beitrags, geteilt. Ordnet man diesem gemittelten Spektrum S_0 die Normtemperatur T_0 zu, ergibt sich so die Rauschtemperatur

$$T_R = \frac{\langle S_{\Phi, \text{ges}} - S_{\Phi, \text{SQ}} \rangle}{\langle S_0 - S_{\Phi, \text{SQ}} \rangle} \cdot T_0. \quad (3.24)$$

Die Division durch das Normspektrum kann vor dem Mitteln frequenzweise, oder nach dem Mitteln durchgeführt werden, falls die Frequenzbänder von $S_{\Phi, \text{ges}}$ und S_0 identisch sind. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.25 dargestellt. Gezeigt sind die ermittelten Temperaturen, wie sie sich nach (3.24) bei jeder einzelnen Frequenz berechnen. Um die Beiträge externer Störungen, exemplarisch durch Kreise markiert, nicht mitzuberechnen, wurden die Daten bei diesen Frequenzen aus dem Datensatz entfernt.

Ein Vergleich der mit dem Rauschthermometer ermittelten Temperaturen mit den Temperaturen des Fixpunktthermometer ist in Abbildung 3.26 gezeigt. Auf der Abs-

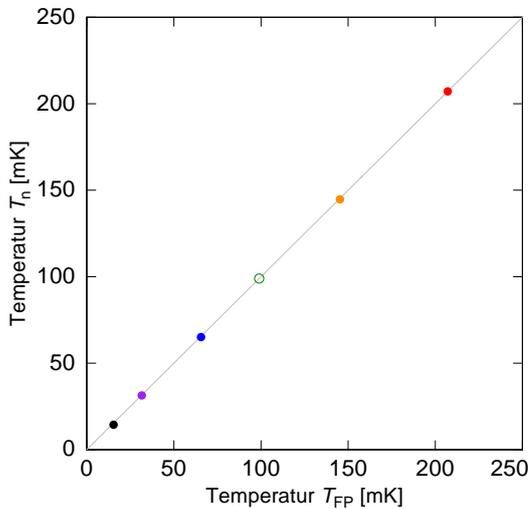


Abb. 3.26: Die mit Hilfe der Rauschspektren ermittelten Temperaturen (Abbildung 3.25) in Abhängigkeit von der Temperatur des Fixpunktthermometers (Abbildung 3.22). Der Temperaturwert des Iridium-Sprungpunkts (offener Kreis) liegt per Definition auf der Winkelhalbierenden, da in diesem Fall $S_{\Phi, \text{ges}}$ und S_0 identisch sind. Alle übrigen ermittelten Temperaturen weichen weniger als 6% von den jeweiligen Normtemperaturen ab, zu erkennen mit Hilfe der Winkelhalbierenden, welche durch eine graue Linie dargestellt ist.

zisse ist die Temperatur des Fixpunktthermometers T_{norm} aufgetragen. Auf der Ordinate die Temperatur, wie sie sich mittels (3.24) aus den Spektren des Rauschthermometers berechnet. Mit einem offenen Kreis ist die Rauschtemperatur eingezeichnet, welche sich aus dem Normspektrum bei 98,9 mK ergibt. Sie liegt per Definition auf der ebenfalls eingezeichneten Winkelhalbierenden, da in diesem Fall $S_{\Phi, \text{ges}}$ und S_0 identisch sind und für $T_0 = 98,9$ mK der Wert der Normtemperatur gewählt wurde. Die übrigen Rauschtemperaturpunkte bestätigen den linearen Zusammenhang zwischen Rauschleistung und Temperatur (3.23).

Um die Rauschtemperatur jederzeit zu ermitteln, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Programm implementiert, welches die soeben vorgestellte Prozedur kontinuierlich durchführt. Damit es möglich mit diesem Rauschthermometer alle vorgestellten Experimente durchzuführen, einschließlich der dazu notwendigen Temperatursteuerung des Kryostaten.

3.3.4 Kohlethermometer

Wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, kann zur Temperaturermittlung aller Experimente das Rauschthermometer benutzt werden. In der Praxis wurde allerdings ein Kohlethermometer eingesetzt, welches mit Hilfe des Rauschthermometers kalibriert worden ist. Der Grund dafür ist wiederkehrendes „Knacken“ des Kryostaten, welches zu einer plötzlichen starken Zunahme der gemessenen Rauschleistung führt. Dieses „Knacken“ wird durch das Lösen mechanischer Spannungen verursacht, welche wiederum entstehen, wenn sich Teile des Kryostaten unterschiedlich stark kontrahieren. Die plötzliche starke Zunahme der gemessenen Rauschleistung wird fälschlicherweise als eine starke Temperaturzunahme interpretiert, was zu einem Fehler der Temperaturregelung führt. Das stattdessen verwendete Widerstandsthermometer wird durch diese mechanischen Störungen nicht beeinflusst.

Zur Kalibration des Kohlethermometers wurde sein Widerstandswert aufgezeichnet, während mit Hilfe des Rauschthermometers die Temperatur verändert und gemessen wurde. Die so erzeugte Widerstands-Temperatur-Abhängigkeit lässt sich unterhalb von 1 K mit folgender empirischer Funktion

$$R_K(T) = \frac{c + a \cdot \tanh\left(\frac{d}{T+b}\right)}{\sqrt{(T \cdot g)^h + 1}} + j \cdot T + k \quad (3.25)$$

beschreiben. Abbildung 3.27 zeigt die gemessenen Widerstandswerte des Kohlethermometers in Abhängigkeit von der mit Hilfe des Rauschthermometers ermittelten Temperatur. Zusätzlich ist eine Anpassung der Messdaten gemäß 3.25 dargestellt.

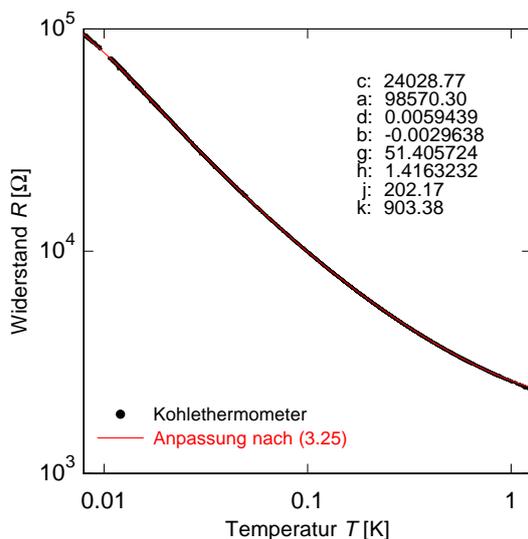


Abb. 3.27: Widerstandswerte des Kohlethermometers in Abhängigkeit von der Temperatur. Als durchgezogene Linie ist eine Funktion gemäß 3.25 dargestellt. Mit den Koeffizienten c, a, d, b, g, h, j und k beschreibt die empirisch ermittelte Funktion die Abhängigkeit sehr gut.

4. Ergebnisse und Diskussion

Im vorherigen Kapitel erfolgte bereits die Charakterisierung des Probenmaterials $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$, einschließlich der Bestimmung der Sprungtemperatur T_c . Des Weiteren wurde die Methode erläutert, mit der die elastischen Eigenschaften der Probe ermittelt werden können. In diesem Kapitel werden die Messergebnisse der *inneren Reibung* und die der *relativen Schallgeschwindigkeitsänderung* erörtert. Zuvor werden äußere- und messtechnisch inhärente Einflüsse auf diese Messungen untersucht. Anschließend erfolgt anhand dieser Messdaten und numerischer Berechnungen des Tunnelmodells eine Analyse und Interpretation der Ergebnisse.

4.1 Einflüsse auf die Messungen

4.1.1 Einfluss der Messumgebung des DPOs

Wie in Abschnitt 4.1.3 gezeigt wird, sollten die akustischen Messungen bei ausreichend geringer Auslenkungsamplitude des DPOs durchgeführt werden, um nicht-lineare Effekte zu vermeiden. Eine geringe Auslenkungsamplitude zieht jedoch ein geringeres Detektionssignal nach sich. Um trotzdem bei einem möglichst großen Signal-zu-Rauschen-Verhältnis messen zu können, sollten unerwünschte Untergrundbeiträge so weit wie möglich beseitigt werden.

Jegliche akustische oder mechanische Störung zeigt sich in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen als erhöhtes Untergrundrauschen. Eine Quelle des Untergrundrauschens ist der verwendete Kryostat selbst, in dem sich die Probe befindet. Der dominante Beitrag stammt vom 1K-Topf des Kryostaten. Dessen Aufgabe ist es, das zirkulierende ^3He des $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten vorzukühlen. Dieser wird über eine Kapillare kontinuierlich mit ^4He versorgt und gepumpt. Mit Hilfe eines Nadelventils kann die ^4He -Zufuhr geregelt oder unterbunden werden.

Abbildung 4.1 zeigt die Auswirkungen dieses zusätzlichen Untergrunds anhand von Rauschspektren im Frequenzbereich zwischen 0,4 und 12,6 kHz, welche mit einem Frequenzanalysator¹ aufgezeichnet wurden. Die generelle Tiefpasscharakteristik lässt sich mit Hilfe eines Widerstandes von 10 M Ω und einer Kabelkapazität von einigen 100 pF erklären. Man erhält einen Tiefpass mit einer Abschneidekante von wenigen hundert Hertz.

Im linken Bild ist das ermittelte Spektrum dargestellt, welches mit geschlossenem Nadelventil gemessen wurde. Das rechte Bild zeigt das mit identischen Einstellungen

¹SR760: Stanford Research Systems, Sunnyvale, CA, USA.

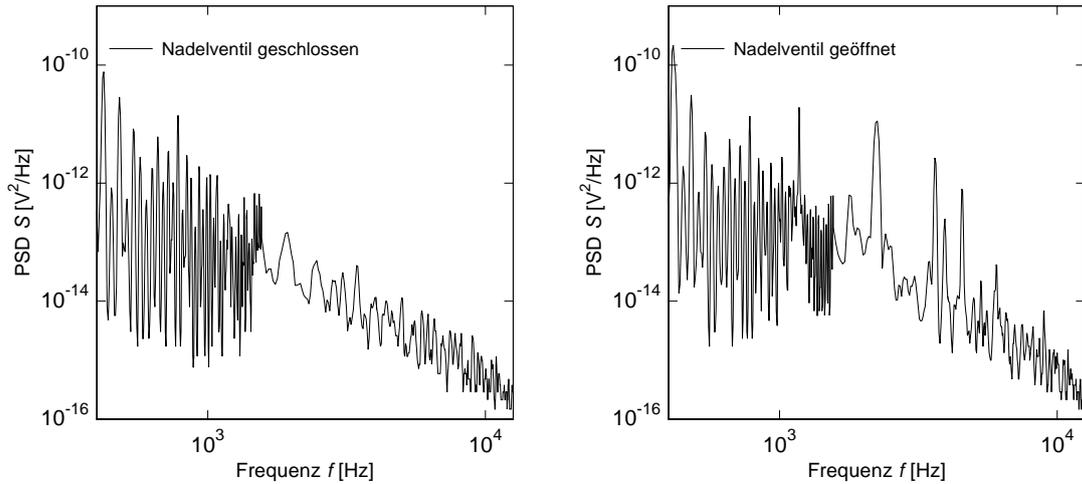


Abb. 4.1: Rauschspektren ermittelt bei geschlossenem und geöffnetem 1K-Topf-Nadelventil. Besonders im Frequenzbereich zwischen 2 kHz und 10 kHz, in welchem auch die meisten gemessenen Eigenmoden des DPOs liegen, ist die spektrale Leistungsdichte erhöht.

ermittelte Spektrum, gemessen bei geöffnetem Nadelventil. Die größten Unterschiede der spektralen Leistungsdichte zeigen sich zwischen 2 und 10 kHz, wo teils erhebliche Rauschbeiträge zum Untergrundrauschen hinzukommen. Genau in diesem Frequenzbereich liegen auch die meisten der gemessenen Eigenmoden des DPOs.

Der drastische Einfluss des durch den 1K-Topf erzeugten Untergrunds auf das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis lässt sich anhand zweier Resonanzkurvenmessungen verdeutlichen von denen eine bei geschlossenem und eine bei geöffnetem Nadelventil aufgenommen wurde. Abbildung 4.2 zeigt diese Resonanzkurven, links bei geschlossenem rechts bei geöffnetem 1K-Topf-Nadelventil, welche unter ansonsten identischen Bedingung mit vergleichsweise geringer Anregung gemacht wurden. Wie schon in Abbildung 3.18 werden jeweils eine Lorentzkurve, $A \cos \phi$ und $A \sin \phi$, sowie Anpassungen gemäß (3.11), (3.12) und (3.13) gezeigt.

Die Ursache des erhöhten Rauschens, welches im rechten Bild zu sehen ist, ist das in den 1K-Topf fließende ^4He , an welchem zur Kühlung gepumpt wird. Um sehr tiefe Temperaturen erzeugen zu können, kann bei dem verwendeten Kryostat nicht komplett auf den 1K-Topf verzichtet werden. Um trotzdem nicht von dieser zusätzlichen Störung betroffen zu sein, wird der 1K-Topf zyklisch zur Füllung geöffnet und anschließend wieder geschlossen. Dazu wurde ein Programm implementiert, das den Heliumfüllstand in regelmäßigen Abständen ermittelt. Fällt dieser unter einen Schwellwert, wird das Nadelventil automatisch geöffnet und die Information an das Messprogramm weitergegeben. Daraufhin wird die Messung unterbrochen und die Temperatur auf dem aktuellen Wert festgehalten. Sobald der 1K-Topf wieder zu mindestens 90% gefüllt ist, wird das Nadelventil automatisch geschlossen. Nach einer zusätzlichen Wartezeit von einigen Minuten können die Messung und die Temperatur-

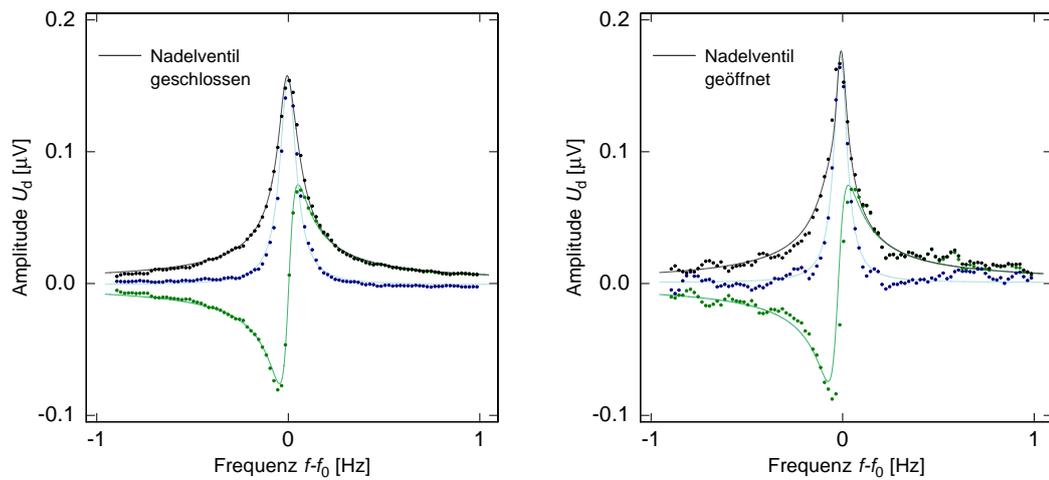


Abb. 4.2: Resonanzkurven ermittelt bei geschlossenem und geöffnetem 1K-Topf-Nadelventil. Anhand der Abweichungen der Messpunkte von den Anpassungskurven wird das unterschiedliche Signal-zu-Rauschen-Verhältnis ersichtlich, hervorgerufen durch den 1K-Topf.

variation fortgeführt werden. Dies ermöglicht es auch über viele Stunden andauernde kontinuierliche Messungen durchzuführen.

Abbildung 4.3 zeigt einen etwa 5,5 Stunden dauernden Ausschnitt einer kontinuierlichen Messung. Dargestellt ist die detektierte Amplitude, welche gleichzeitig als Regelgröße dient (Details siehe Abschnitt 3.2.4) in Abhängigkeit von der Zeit. Etwa alle 1,5 Stunden ist eine mehrere Minuten andauernde Lücke zu sehen, die daher rührt, dass in dieser Zeit die Messung unterbrochen war, da der 1K-Topf gefüllt wurde. Des weiteren ist auch ein zu unregelmäßigen Zeiten auftretendes Einbrechen der Amplitude zu erkennen. Der Grund dafür ist das in Abschnitt 3.3.4 bereits vorgestellte plötzlich auftretende „Knacken“ des Kryostaten, welches durch das Füllen des Dewars mit flüssigem Helium verursacht wird. Wie in Abbildung 4.3 ersichtlich, kann dies noch viele Stunden nach dem Füllen auftreten.

Die genaue Auswirkung auf die Messung kann anhand der Ausschnittsvergrößerung in Abbildung 4.3 erklärt werden. Das „Knacken“ bewirkt eine plötzliche starke Kraft auf den DPO, welcher dadurch aus seiner periodischen Schwingung gerissen wird, was zu einem plötzlichen Verlust der Phasenkohärenz führt. Das Ergebnis ist ein Einbrechen des Amplitudensignals. Anschließend steigt das gemessene Signal wieder. Dies liegt zum einen daran, dass sich der Oszillator wieder einschwingt und zum anderen daran, dass der PID-Regler nachregelt, wie in der Ausschnittsvergrößerung gezeigt wird. Um trotz dieser enormen Störungen kontinuierlich messen zu können, sind eine Reihe von Besonderheiten in beiden Reglern implementiert worden, wie zum Beispiel Maximal- und Minimalwerte oder Totzeiten.

Da sich das Knacken nicht vorhersagen lässt, kann die Messung auch nicht vorher

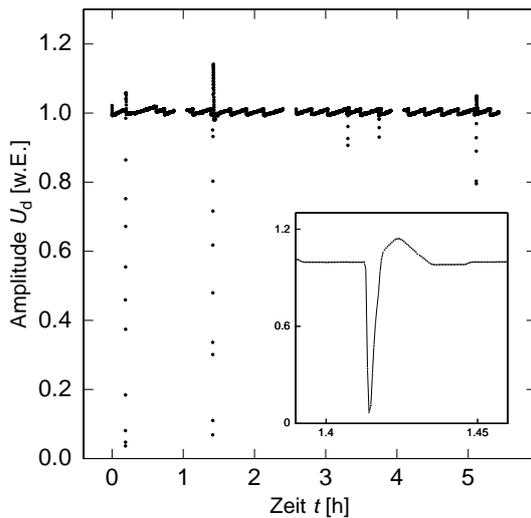


Abb. 4.3: Kontinuierliche Messung der Amplitude in Abhängigkeit von der Zeit. Die regelmäßigen Lücken entstehen, wenn das Messprogramm pausiert, solange der 1K-Topf gefüllt wird. Das unregelmäßige Einbrechen der Amplitude wird durch plötzlich auftretendes „Knacken“ des Kryostaten verursacht. Die Ausschnittsvergrößerung zeigt das Einregelverhalten des PID-Reglers nach einer kurzzeitigen starken Störung.

pausiert werden. Als Ausweg wurde zum einen nach dem Füllen des Dewars im Allgemeinen etwa zwei Stunden gewartet – in den ersten zwei Stunden nach dem Füllen tritt das „Knacken“ gehäuft auf –, bevor eine längere kontinuierliche Messung gestartet wurde. Zum anderen ist, wie in der Abbildung zu sehen, die Regelung nach kurzer Zeit wieder beruhigt. So wurden zur Auswertung die entsprechenden Abschnitte aus den Messdaten entfernt. Trat das „Knacken“ während einer Einzelmessung auf, wurde diese wiederholt.

4.1.2 Einfluss der Vorspannung

Wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, wird zur kapazitiven Detektion des Messsignals eine Vorspannung U_b benötigt. Diese beträgt typischerweise einige hundert Volt. Im Folgenden wird der Einfluss der Vorspannung auf die Detektionsamplitude, die innere Reibung und die Schallgeschwindigkeit untersucht.

Einfluss der Vorspannung auf die Amplitude Wie man anhand von (3.18) erkennt, wird bei der kontinuierlichen Messung zur Bestimmung der inneren Reibung die Detektionsamplitude U_d benötigt. Außerdem dient diese als Regelgröße (siehe Abbildung 3.21). Nach (3.8) ist die Detektionsamplitude

$$U_d(t) \propto U_b \frac{\xi(t)}{x_d^2} \quad (4.1)$$

proportional zur Vorspannung U_b . Abbildung 4.4 zeigt die gemessene Amplitude in Abhängigkeit von der Vorspannung in doppelt logarithmischer Auftragung. Zusätzlich ist in dieser Auftragung eine Gerade mit Steigung eins eingezeichnet. Man er-

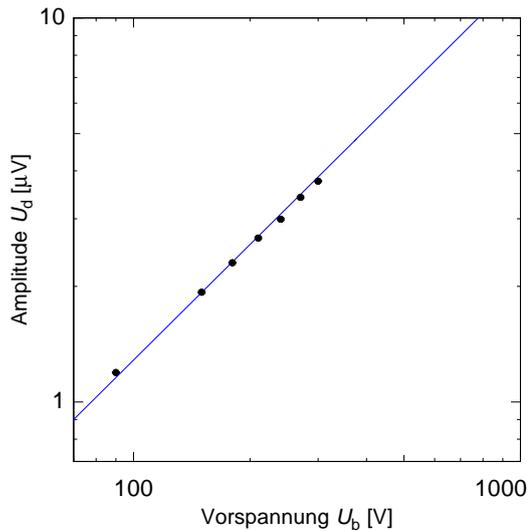


Abb. 4.4: Detektionsamplitude in Abhängigkeit von der Vorspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade hat die Steigung eins.

kennt eine annähernde Proportionalität zwischen Vorspannung und Amplitude. Alle kapazitiven Messungen wurden mit der selben Vorspannung (400 V) durchgeführt.

Einfluss der Vorspannung auf die innere Reibung Um den Einfluss der Vorspannung auf die innere Reibung zu untersuchen, wurden Resonanzkurven mit Vorspannungen zwischen 90 und 400 V bei 1,4 K gemessen. Abbildung 4.5 zeigt den Kehrwert der inneren Reibung, die Güte Q , in Abhängigkeit von der Vorspannung. Der

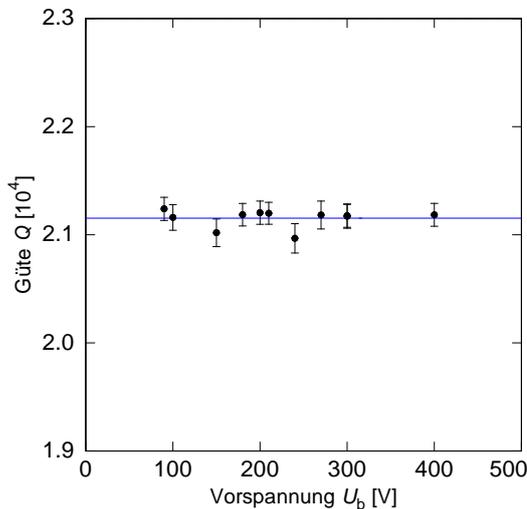


Abb. 4.5: Güte in Abhängigkeit von der Vorspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade ergibt sich aus dem Mittelwert aller Messpunkte.

Wert der Güte sowie die Fehlerbalken ergeben sich anhand der Anpassungen (3.13) an die Messdaten der Lorentzkurven. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade ist der Mittelwert aller Messpunkte. Innerhalb der Messfehler ist kein systematischer Einfluss der Vorspannung auf die Güte, und somit die innere Reibung, zu erkennen.

Einfluss der Vorspannung auf die Schallgeschwindigkeit Betrachtet man den harmonisch schwingenden DPO als Feder-Masse-Pendel, kann dessen Resonanzfrequenz

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{D}{m}} \quad (4.2)$$

mit Hilfe einer effektiven Federkonstanten D und einer effektiven Masse m beschrieben werden. Zur Berechnung der effektiven Federkonstante kann das *Hookesche Gesetz* herangezogen werden. Die gesamte rücktreibende Federkraft ergibt sich aus einem elastischen Anteil und einem elektrischen Anteil, da der DPO mit der Detektionselektrode einen Plattenkondensator bildet. Auf Grund der Vorspannung U_b wird der DPO von der Elektrode angezogen. Man erhält als Gesamtkraft

$$F = -D_{\text{mech}}\xi + \frac{1}{2}C \frac{U_b^2}{x - \xi} = -D_{\text{mech}}\xi + \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_0 A U_b^2}{(x - \xi)^2}. \quad (4.3)$$

Hierbei ist x wieder der Gleichgewichtsabstand zwischen DPO und Elektrode und ξ die Auslenkung aus der Gleichgewichtslage. Somit folgt für die effektive Federkonstante

$$D = -\frac{dF}{d\xi} = D_{\text{mech}} - \frac{\varepsilon_0 A U_b^2}{(x - \xi)^3} \stackrel{(\xi \ll x)}{\approx} D_{\text{mech}} - \frac{\varepsilon_0 A U_b^2}{x^3}. \quad (4.4)$$

Eine steigende Vorspannung führt also zu einer Verringerung der Federkonstante, was mit (4.2) zu einer Verringerung der Resonanzfrequenz führt. Abbildung 4.6 zeigt die gemessene Resonanzfrequenz f_0 in Abhängigkeit von der Vorspannung. Die zusätzlich eingezeichnete Linie ist eine Anpassung

$$f_0(U_b) = \frac{1}{2\pi m^{1/2}} \sqrt{D_{\text{mech}} - \frac{\varepsilon_0 A U_b^2}{x^3}} \quad (4.5)$$

gemäß (4.4) und (4.2), wobei die effektive Masse m und die elastische Federkonstante D_{mech} freie Parameter sind. Mit A wird wieder die Elektrodenoberfläche und mit ε_0 die Permittivität des Vakuums bezeichnet. Nimmt man für den Gleichgewichtsabstand $x=75 \mu\text{m}$ an, erhält man für die effektive Masse gerade die tatsächliche Masse des DPOs.

Die Untersuchungen zum Einfluss der Vorspannung auf die Messgrößen zeigen also keine Abweichungen vom theoretisch erwarteten Verhalten. Bei allen Messungen die im Folgenden gezeigt werden und bei denen die kapazitive Detektionsmethode verwendet wurde, betrug die Vorspannung 400 V. Ein so großer Wert wurde gewählt, da das Detektionssignal und somit auch das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis proportional zur Vorspannung ist, wie man anhand von Abbildung 4.4 sieht. Bei Messungen mit Hilfe der induktiven Detektionstechnik, welche zur Untersuchung der asymmetrischen Torsionsmethoden benutzt wurde, wurde gänzlich auf die Vorspannung verzichtet.

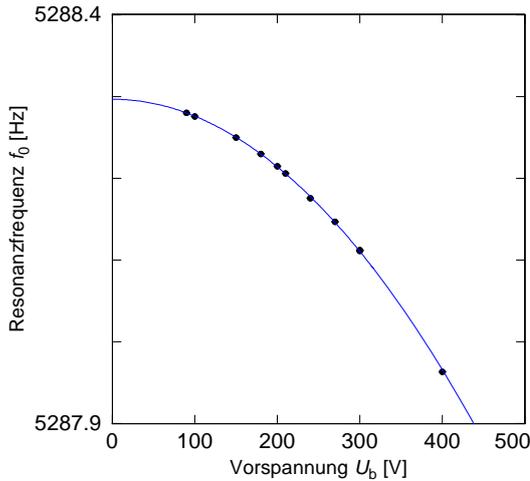


Abb. 4.6: Resonanzfrequenz in Abhängigkeit von der Vorspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die zusätzlich eingezeichnete Linie ist eine Anpassung gemäß (4.5).

4.1.3 Einfluss der Anregungsspannung

Zur Bestimmung der inneren Reibung muss während der kontinuierlichen Messung neben der Vorspannung auch die Anregungsspannung berücksichtigt werden. Im Folgenden wird der Einfluss der Anregungsspannung, die typischerweise unter 1 V beträgt, auf die Detektionsamplitude, die innere Reibung und die Schallgeschwindigkeit untersucht.

Einfluss der Anregungsspannung auf die Amplitude Nach (3.18) dient die Anregungsspannung während der kontinuierlichen Messung als Stellgröße und geht dort quadratisch ein. Der Grund ist nach (3.17) die quadratische Abhängigkeit von der Detektionsamplitude von der Anregung

$$U_d \propto U_0^2, \quad (4.6)$$

da die Kraft auf gegenpolig geladene Kondensatorplatten quadratisch mit der Spannung zwischen beiden wächst. Abbildung 4.7 zeigt die gemessene Amplitude in Abhängigkeit von der Anregungsspannung in doppelt logarithmischer Auftragung. Zusätzlich ist in dieser Auftragung eine Gerade mit Steigung zwei eingezeichnet. Man erkennt, dass die vorhergesagte quadratische Abhängigkeit zwischen Anregung und Amplitude sehr gut bestätigt wird.

Einfluss der Anregungsspannung auf die innere Reibung Abbildung 4.8 zeigt den Kehrwert der inneren Reibung, die Güte Q , in Abhängigkeit von der Anregungsspannung. Ein systematischer Einfluss zwischen Güte und Anregung ist innerhalb des Messfehlers nicht zu erkennen. Wie schon bei der Untersuchung des Einflusses der Vorspannung auf die innere Reibung, wird dies im Bereich linearer Anregung

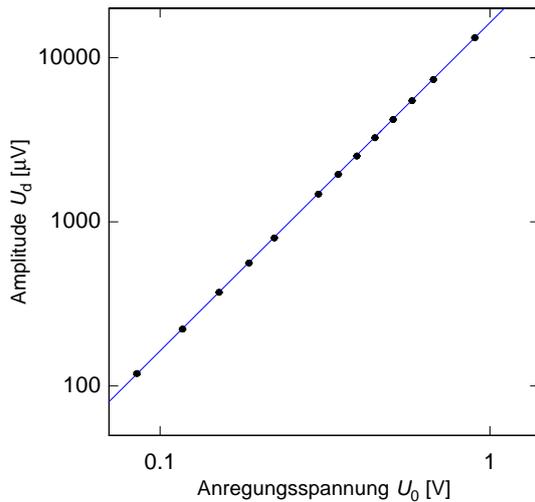


Abb. 4.7: Detektionsamplitude in Abhängigkeit von der Anregungsspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die eingezeichnete Gerade hat die Steigung zwei, womit in der doppelt logarithmischen Darstellung die quadratische Abhängigkeit gezeigt wird.

auch nicht erwartet. Da, wie im vorherigen Absatz gezeigt, die Amplitude proportional zum Quadrat der Anregung ist, ergibt sich bei kleinen Anregungsspannungen ein geringeres Signal-zu-Rauschen-Verhältnis. Dies zeigt sich in der Abbildung durch größere Fehlerbalken bei kleinen Anregungsspannungen. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade entspricht dem Mittelwert aller gemessenen Güten.

Einfluss der Anregungsspannung auf die Schallgeschwindigkeit Bei identischer Vorspannung U_b wird kein Einfluss der Anregung auf die Resonanzfrequenz erwartet, solange keine nichtlinearen Rückstellkräfte (Beschreibung im folgenden Abschnitt) wirken. Abbildung 4.9 zeigt die ermittelte Resonanzfrequenz in Abhängigkeit von der Anregungsspannung. Ein systematischer Einfluss der Anregung auf die

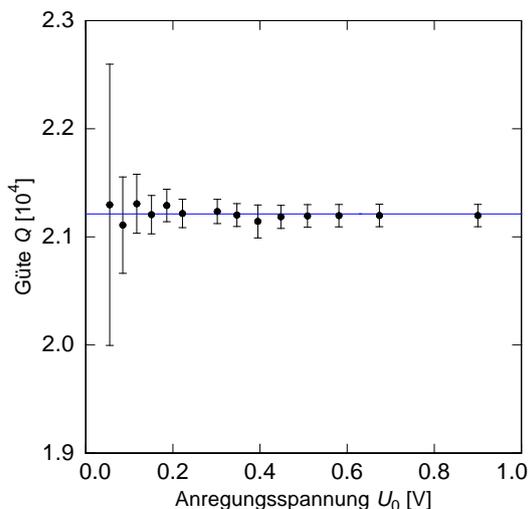


Abb. 4.8: Güte in Abhängigkeit von der Anregungsspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade entspricht dem Mittelwert aller gemessenen Güten.

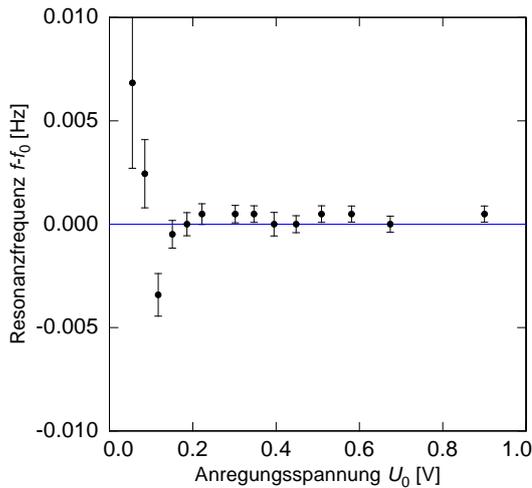


Abb. 4.9: Resonanzfrequenz in Abhängigkeit von der Anregungsspannung der AT 2-Mode bei 1,4 K. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade entspricht dem Mittelwert aller gemessenen Resonanzfrequenzen. Nicht berücksichtigt wurden dabei die Messungen mit Anregungsspannungen unter 120 mV.

Resonanzfrequenz ist nicht zu erkennen. Wie schon bei der Untersuchung zum Einfluss der Anregung auf die innere Reibung streuen die ermittelten Werte bei geringen Anregungsspannungen stärker. Die eingezeichnete Gerade stellt den Mittelwert der Resonanzfrequenzen jener Messungen dar, die mit Anregungsspannungen größer als 120 mV durchgeführt wurden.

Einfluss von Nichtlinearitäten

Wie man anhand der Messungen aus Abbildung 4.7 bis 4.9 erkennen kann, lässt sich keine systematische Abhängigkeit von der Messgrößen von der Stärke der verwendeten Anregungsspannung und somit DPO-Auslenkung ausmachen. Dies ist der Fall, solange die Anregung und somit die Auslenkungen ausreichend klein sind. Abbildung 4.10 zeigt drei Resonanzkurven. Die Anregung wurde zwischen $U_0 = 0,7\text{ V}$ und $U_0 = 7\text{ V}$ variiert. Zur Verdeutlichung ist die Resonanzkurve der kleinsten Anregung zusätzlich vergrößert dargestellt. Anhand der Anpassung gemäß 3.13 ist zu erkennen, dass sie lorentzförmig ist. Die beiden anderen Resonanzkurven sind jedoch zu kleineren Frequenzen geneigt. Eine zu geringeren Frequenzen geneigte Resonanzkurve würde bei der kontinuierlichen Messung mit einer Verringerung der Schallgeschwindigkeit interpretiert werden. Tatsächlich lässt sich der auftretende Effekt mit nichtlinearen Rückstellkräften [Sto50] der Form $f_0^2 \xi + \beta \xi^3$ erklären, wobei $\beta < 0$ eine Konstante und ξ eine normalisierte Auslenkungsamplitude ist.

Die Auftretende Verschiebung der Resonanzfrequenz kann mit einer logarithmischen Amplitudenabhängigkeit approximiert werden [Esq92]. Die gemessene Resonanzfrequenz

$$f'_0 \approx f_0 (1 - k |\ln u|) \quad (4.7)$$

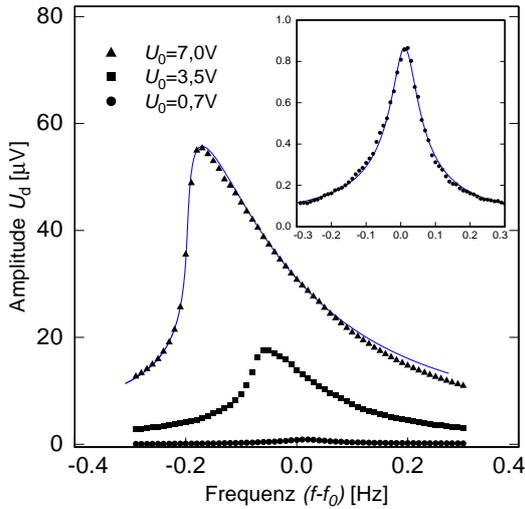


Abb. 4.10: Resonanzkurven gemessen bei unterschiedlichen Anregungsspannungen. Ein zu starkes Anregen führt zu nichtlinearen Rückstellkräften, welche sich auf die Form der Resonanzkurve auswirken. Die in der Ausschnittsvergrößerung dargestellte Resonanzkurve bei $U_0 = 0,7\text{ V}$ hat eine lorentzförmige Gestalt, wie durch die Anpassung gemäß (3.13) gezeigt ist. Die Resonanzkurven, welche mit einer Anregung von $U_0 = 3,5\text{ V}$ und $U_0 = 7\text{ V}$ gemessen wurden, zeigen sich zu niedrigeren Frequenzen geneigt.

ist gegenüber der Resonanzfrequenz bei linearer Rückstellkraft reduziert, wobei u die (reduzierte) Auslenkungsamplitude, f_0 die Resonanzfrequenz bei $u = 1$ und k eine numerische Konstante (Größenordnung $\approx 10^{-5}$) ist. Die durchgezogene Kurve bei der Resonanzkurve die mit $U_0 = 7\text{ V}$ erzeugt wurde, ist eine Anpassung gemäß (3.13), wobei die Frequenz f_0 gemäß (4.7) modifiziert ist.

Neben nichtlinearen Rückstellkräften kann es noch zwei weitere Ursachen für nicht-symmetrische Resonanzkurven geben. Neben dem Selbstheizen der Probe auf Grund der eigenen Schwingung bei nicht ausreichender Wärmeleitfähigkeit, ist eine Veränderung des Beitrags der resonanten Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Phononen beziehungsweise Elektronen als Ursache möglich. Abbildung 4.11 zeigt im unteren Abbildungsteil eigene Messungen, die den Einfluss der maximalen Verzerrung, welche proportional zur maximalen Auslenkung ist, auf die relative Änderung der Resonanzfrequenz zeigen. Bis zu einer bestimmten Verzerrung gibt es keinen Einfluss auf die Resonanzfrequenz. Mit größeren Verzerrungen, wird die Resonanzfrequenz jedoch reduziert. Im oberen Bildteil sind qualitative Abweichungen der relativen Änderung der Resonanzfrequenz auf Grund von Verzerrungen dargestellt [Esq92], wie sie bei konstanter Temperatur unterhalb der Temperatur des Schallgeschwindigkeitsmaximums T_{max} (siehe (2.54)) auftreten können. Die durchgezogene Linie zeigt das erwartete Verhalten für den Fall, dass ein veränderter Beitrag der resonanten Wechselwirkung die Ursache ist. Mit der gestrichelten Linie wird das Verhalten bei Selbstheizung der Probe gezeigt. Nichtlineare Rückstellkräfte führen zu einem Verhalten, wie es mit der strichpunktierten Linie angedeutet wird. Anhand des Vergleichs zwischen Vorhersagen und Messdaten kann von letzterem Fall ausgegangen werden, da sich die Verringerung der Resonanzfrequenz auch bei größten Verzerrungen nicht reduziert.

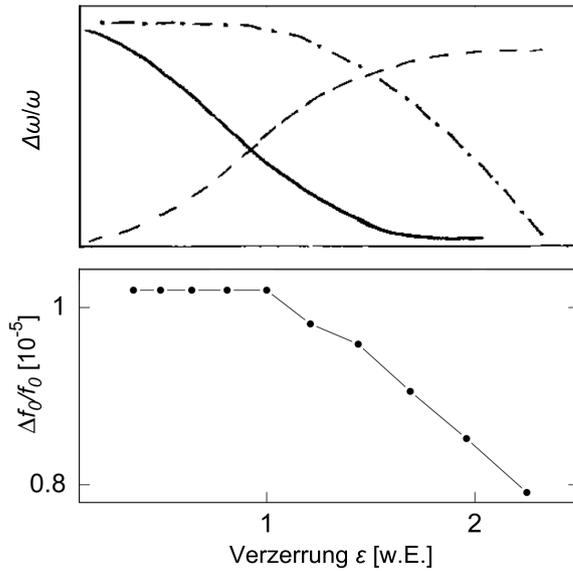


Abb. 4.11: Im oberen Bildteil sind qualitative Abweichungen der relativen Änderung der Resonanzfrequenz auf Grund von Verzerrungen dargestellt, wie sie bei konstanter Temperatur unterhalb von T_{\max} (siehe (2.54)) auftreten [Esq92]: Veränderung des Beitrags der resonanten Wechselwirkung (durchgezogene Linie), Selbstheizen der Probe (gestrichelte Linie) und nichtlineare Rückstellkräfte (strichpunktierte Linie).

Im unteren Bildteil sind eigene Messungen des Einflusses der Verzerrung, welche proportional zur maximalen Auslenkung ist.

Die Analyse des Einflusses der Anregungsspannung auf die Messgrößen zeigt, dass keine systematische Abhängigkeit vorliegt, solange die Anregung gering genug gewählt wurde. Andernfalls führen Nichtlinearitäten zu einer „geneigten“ Lorentzkurve bei den Einzelmessungen. Während der kontinuierlichen Messungen würde dies nicht notwendigerweise bemerkt werden. Die Folge wäre allerdings eine als zu gering angenommene Resonanzfrequenz und eine als zu hoch angenommene innere Reibung. Bei der Wahl der Anregungsspannung wurde daher darauf geachtet, bei möglichst geringen Anregungen unter Berücksichtigung eines akzeptablen Signal-zu-Rauschen-Verhältnis zu messen. Das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis variiert von Mode zu Mode. Für die mit der induktiven Detektionsmethode gemessenen antisymmetrischen Torsionsmoden AT1 und AT2 war die verwendete Anregungsspannung typischerweise geringer als 250 mV. Da sich die innere Reibung zu tiefsten Temperaturen stark reduziert und die Auslenkungsamplitude konstant gehalten wurde, betrug die geringste Anregungsspannung etwa 50 mV.

4.1.4 Einfluss der Regelung

Im Abschnitt 3.2.4 wurde bereits die Methode der kontinuierlichen Messung zur Bestimmung der Resonanzfrequenz und der inneren Reibung vorgestellt. Dabei wurde auch auf die automatische Temperaturregelung eingegangen, welche von dem Ergebnis der Regelung der Resonanzfrequenz selbst abhängig ist. Im Folgenden wird erläutert, inwiefern sich die Regelung auf die Bestimmung der Messgrößen auswirkt. Bei der kontinuierlichen Messung wurden für die PID-Parameter stets so gewählt, dass die Phase nach Abzug aller Störungen (siehe Abbildung 4.3) üblicherweise we-

niger als $0,5^\circ$ von der gewünschten Phasenverschiebung von $\phi = 90^\circ$ abwich (siehe Abbildung 3.20). Mit Hilfe einer Resonanzkurve kann abgeschätzt werden, wie sehr sich diese Abweichung auf die Resonanzfrequenz f_0 und die innere Reibung Q^{-1} auswirkt.

Abbildung 4.12 zeigt die Phasendifferenz zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs im Frequenzbereich um f_0 der AT 2-Mode bei 15 mK. Hier ist aller-

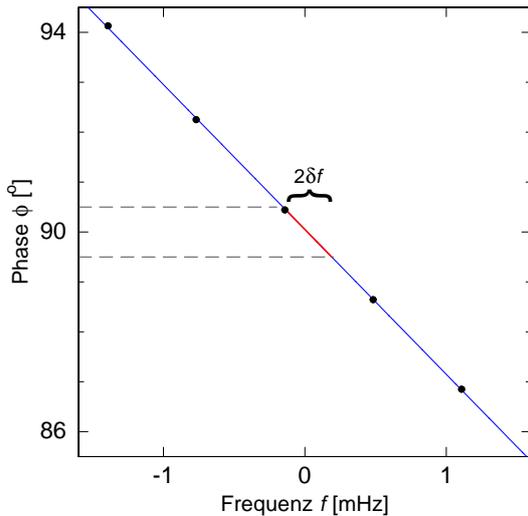


Abb. 4.12: Phasendifferenz zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs im Frequenzbereich um f_0 . Die durchgezogene Linie dient der optischen Führung. Hervorgehoben ist der Bereich, welcher bei der kontinuierlichen Messung maximal angenommen wird $90 \pm 0,5^\circ$. Auf diese Weise kann die maximale Abweichung von der Resonanzfrequenz δf ermittelt werden. In diesem Beispiel beträgt sie etwa $\delta f = 0,00015$ Hz.

dings ausschließlich der Bereich wenige Grad um die gewünschte Phasenverschiebung von 90° dargestellt. Zusätzlich ist eine Linie zwischen den Datenpunkten eingezeichnet, welche der optischen Führung dient. Hervorgehoben ist der Bereich $90 \pm 0,5^\circ$, welcher bei der kontinuierlichen Messung maximal angenommen wird. Über den entsprechenden Bereich auf der Abszisse $2\delta f$ kann die maximale Abweichung von der Resonanzfrequenz f_0 ermittelt werden, die bei der kontinuierlichen Messung auftritt. In diesem Beispiel beträgt sie etwa $\delta f = 0,00015$ Hz was bei einer Frequenz von $f_0 = 5280$ Hz einer relativen Abweichung von etwa $|\delta f|/f_0 = 3 \cdot 10^{-8}$ entspricht, was ein bis zwei Größenordnung kleiner als die notwendige Auflösung in den hier diskutierten Experimenten ist.

Um die daraus resultierende maximale Abweichung der Amplitudenmessung zu ermitteln kann Gleichung (3.13) bei $f = f_0 + \delta f$ ausgewertet werden. Bei einer angenommenen Güte von $Q = 10^5$ und einer Frequenzabweichung von $\delta f = 0,00015$ Hz beträgt die relative Abweichung der Amplitude $|A(f_0) - A(f_0 + \delta f)|/A(f_0) = 2 \cdot 10^{-5}$. Sowohl die Abweichung der Resonanzfrequenz als auch die der Amplitude und somit der inneren Reibung auf Grund der Regelung, sind bei einer Regelung dieser Qualität vernachlässigbar.

4.2 Analyse und Interpretation

In Kapitel 4.1 konnte gezeigt werden, dass äußere Einflüsse auf die Messungen, wie unregelmäßiges „Knacken“ oder der Einfluss der Regelung beherrschbar oder vernachlässigbar gering sind. Des weiteren wurde gezeigt, dass die Auswirkungen messtechnisch inhärenter Einflüsse wie die der Vor- und Anregungsspannung verstanden sind. Da außerdem in Kapitel 3.3 die Temperaturbestimmung der Probe erläutert wurde, können im Folgenden die Messergebnisse der Schallgeschwindigkeitsänderung und der inneren Reibung der Probe vorgestellt und analysiert werden. Zuerst wird der Temperaturbereich behandelt, in dem die Probe normalleitend ist, also etwa zwischen 1 und 300 K. Der Tieftemperaturbereich folgt anschließend.

4.2.1 Temperaturbereich oberhalb weniger Kelvin bis Raumtemperatur

Gesamtverlauf der Schallgeschwindigkeit

Abbildung 4.13 zeigt die Schallgeschwindigkeitsänderung der antisymmetrischen Torsionsmode AT 1 im gesamten gemessenen Temperaturbereich zwischen 10 mK und 300 K. In diesem großen Temperaturbereich steigt die Schallgeschwindigkeit fast überall monoton zu tiefen Temperaturen. Der Anstieg ist zwischen Raumtemperatur und etwa 60 K annähernd konstant und wird mit weiter sinkender Temperatur bis etwa 2 K immer geringer.

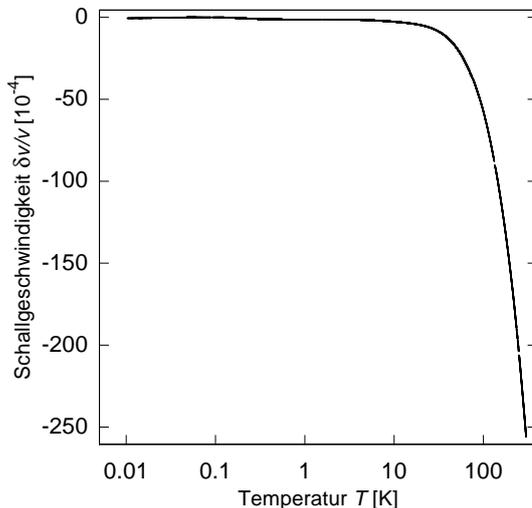


Abb. 4.13: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 10 mK und 300 K.

Die Schallgeschwindigkeit setzt sich aus einem longitudinalen und transversalen Anteil

$$v_l \propto \sqrt{\frac{E}{\rho}}, \quad v_t \propto \sqrt{\frac{G}{\rho}} \quad (4.8)$$

zusammen. Eine sinkende Temperatur führt zu thermischer Kontraktion und damit einhergehend einer Vergrößerung der interatomaren Bindungsstärke. Dies führt zu einer Vergrößerung des Elastizitätsmoduls E und des Schermoduls G . Deren Vergrößerung überwiegt die Zunahme der Dichte ρ , was insgesamt zu einer Schallgeschwindigkeitserhöhung führt. Eine genauere Untersuchung der Schallgeschwindigkeitsänderung von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ in diesem Temperaturbereich wurde in [Sch14] vorgenommen.

Gesamtverlauf der inneren Reibung

Nach der Betrachtung der Schallgeschwindigkeitsänderung von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ folgt in diesem Abschnitt die innere Reibung. Abbildung 4.14 zeigt die innere Reibung der AT 2-Mode im gesamten gemessenen Temperaturbereich zwischen 10 mK und 300 K. Sie zeigt viele unterschiedliche Merkmale. Von tiefsten Temperaturen kommend steigt

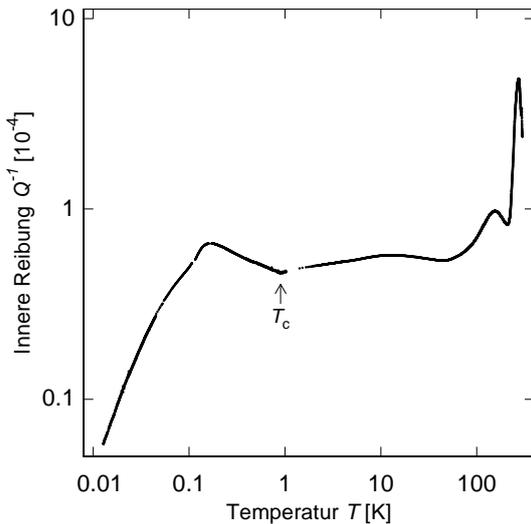


Abb. 4.14: Innere Reibung der AT 2-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 10 mK und 300 K.

sie zunächst stark an und erreicht ein lokales Maximum. Mit weiter steigender Temperatur reduziert sich die innere Reibung, bis sie bei T_c ein scharf ausgeprägtes lokales Minimum aufweist. Im Temperaturbereich, in dem das Probenmaterial normalleitend ist, zeigt die innere Reibung drei unterschiedlich stark ausgeprägte Maxima bei 13, 154 und 272 K.

Innere Reibung zwischen der Sprungtemperatur und Raumtemperatur

Bei allerhöchsten Temperaturen, also oberhalb der Glasübergangstemperatur T_g , wird die innere Reibung in Gläsern durch makroskopische viskose strukturelle Umordnung bestimmt, welche zu einem kollektiven Relaxationsprozess führt. Dies zeigt

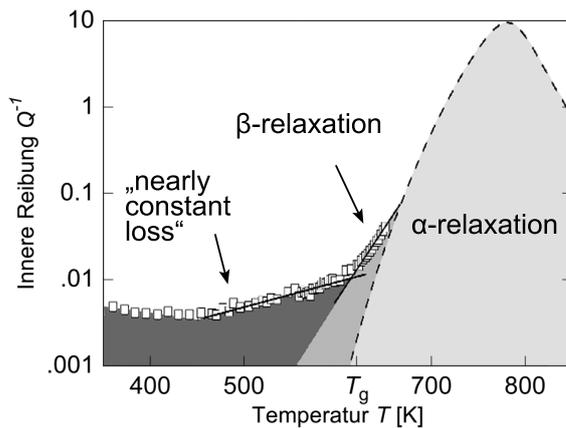


Abb. 4.15: Innere Reibung des metallischen Glases $\text{Zr}_{65}\text{Cu}_{27,5}\text{Al}_{7,5}$ im Temperaturbereich oberhalb von 350 K. In der Literatur wird bei der Betrachtung der inneren Reibung der Temperaturbereich unterhalb von T_g häufig mit „nearly constant loss“ beschrieben. Nach [Rös04].

sich in einem breiten Maximum der inneren Reibung, welches α -Relaxationsmaximum genannt wird. Dieser α -Relaxation ist in vielen Gläsern ein Zusatzbeitrag vorgelagert, der als Johari-Goldstein-Relaxation bezeichnet wird oder allgemeiner als langsame β -Relaxation [Wil71]. Dieser oft vorhandene Zusatzbeitrag zeigt sich an der Nieder-temperaturflanke des α -Maximums. Die Ursache dieser sekundären Relaxation ist ungeklärt und Gegenstand aktueller Forschung. Abbildung 4.15 zeigt die innere Reibung des metallischen Glases $\text{Zr}_{65}\text{Cu}_{27,5}\text{Al}_{7,5}$ welches aus einer Legierung besteht, die der in dieser Arbeit vermessenen sehr ähnlich ist. Man erkennt den Anstieg der inneren Reibung, welche mit der β -Relaxation assoziiert wird, oberhalb von T_g , welches bei diesem Glas bei 620 K liegt. Unterhalb von T_g erkennt man ein seichtes Minimum der inneren Reibung zwischen 350 K und T_g . In der Literatur wird bei der Betrachtung der inneren Reibung dieser Temperaturbereich unterhalb von T_g häufig mit „nearly constant loss“ bezeichnet.

Dass die innere Reibung unterhalb von T_g ganz und gar nicht als annähernd konstant betrachtet werden kann, zeigt Abbildung 4.16. In dieser Abbildung ist die innere Reibung in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen $T_c = 0,9$ K und Raumtemperatur aufgetragen. Zur deutlicheren Darstellung ist im linken Bildteil die innere Reibung unterhalb von $Q^{-1} = 10^{-4}$ dargestellt. Es zeigen sich Maxima bei 13 K (a) und 154 K (b). Im rechten Bildteil von Abbildung 4.16 ist die innere Reibung im Temperaturbereich zwischen 125 K und Raumtemperatur dargestellt. Wie hier deutlich zu sehen ist, besitzt das Maximum (b) einen etwa zehnfach kleineren Absolutwert als das Maximum, welches bei 272 K (c) auftritt. Zusätzlich ist noch ein vergleichsweise schwach ausgeprägtes Nebenmaximum an dessen Hochtemperaturflanke vorhanden, welches seinen höchsten Wert bei etwa 293 K erreicht.

Das ausgeprägteste Maximum, welches sich im Temperaturbereich um 272 K befindet, ist in linearer Auftragung in der linken Bildhälfte von Abbildung 4.17 dargestellt. Zusätzlich ist in der rechten Bildhälfte die innere Reibung von amorphem $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ dargestellt, welches mit verschiedenen Konzentrationen von Wasserstoff dotiert wurde [Yag04].

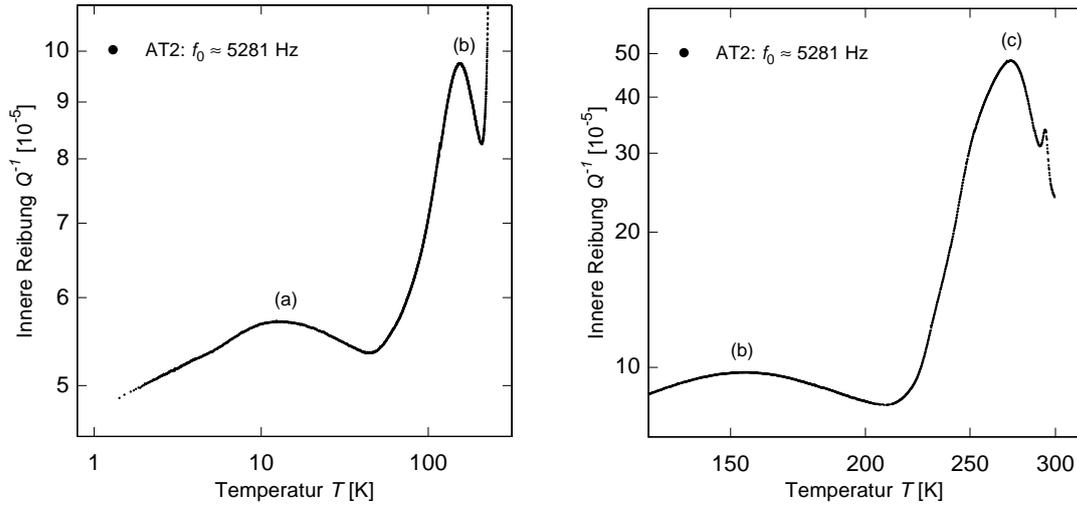


Abb. 4.16: Innere Reibung der antisymmetrischen Torsionsmode AT2 in Abhängigkeit von der Temperatur in doppelt logarithmischer Darstellung. Es finden sich Maxima der inneren Reibung bei 13 K, 154 K (links), sowie bei 272 K (rechts).

Im Temperaturbereich zwischen 200 und 350 K werden sechs Messungen der inneren Reibung gezeigt, bei denen die untersuchten Proben eine Wasserstoffkonzentration bis zu 8,7 Atomprozent aufwiesen. Zu sehen sind sechs unterschiedlich stark ausgeprägte Maxima. Sowohl die Absolutwerte als auch die Temperatur der Maxima variieren mit der zugefügten Wasserstoffdotierung, wobei sich jedoch kein systematisches Verhalten erkennen lässt. Die Temperatur, bei der die Maxima auftreten, stimmt sehr gut mit derjenigen überein, welche im Rahmen dieser Arbeit gemessen wurde. Der Absolutwert der inneren Reibung variiert stark mit der Dotierungsstärke und wird bis zu 15-mal so groß, wie derjenige der eigenen Messung. Die Breite der Maxima erstreckt sich über einen Temperaturbereich, der etwa 2-3-mal so groß ist. Neben dem Einfluss des Wasserstoffs kann dies wahrscheinlich teilweise auch auf die verwendete Probengeometrie zurückgeführt werden. Für die Messungen wurden *Vibrating-Reeds* benutzt, welche aus nur mikrometerdicken Bändchen bestanden. Da die aufgeführten Absolutwerte der Wasserstoffkonzentrationen fragwürdig erscheinen, soll hier keine quantitative Interpretation unternommen werden. Qualitativ zeigt sich, dass der vorhandene Wasserstoff für die Maxima verantwortlich ist. Diese Maxima der inneren Reibung findet man üblicherweise in allen metallischen Gläsern, die auf sehr Wasserstoff-affinen Metallen beruhen, wie beispielsweise Zirkon- oder Magnesiumlegierungen [Ber78]. Bei diesen Gläsern und somit auch bei der auf Zirkon basierten Legierung $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$ findet sich eine erhöhte innere Reibung zwischen 200 und 300 K. Erklärt wird diese mit der Verzerrungsfeld-induzierten kurzreichweitigen Umlagerung von Wasserstoff innerhalb der Matrix des metallischen Glases und wird üblicherweise *Snoek-Relaxation* genannt [Sno41].

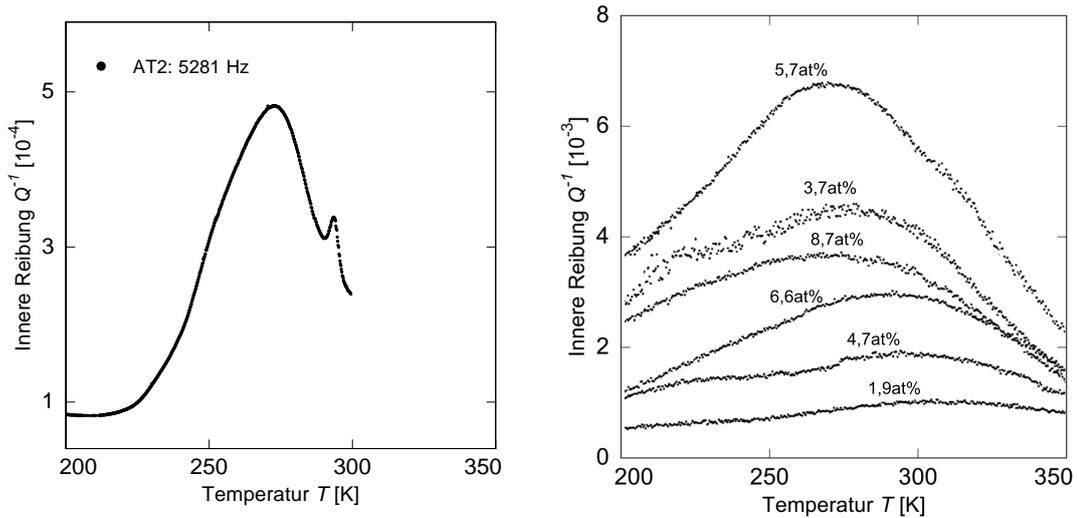


Abb. 4.17: Innere Reibung der AT 2-Mode (links) und unterschiedlich stark wasserstoffdotierter *Vibrating-Reeds* [Yag04] in Abhängigkeit von der Temperatur (rechts).

Abbildung 4.18 zeigt in der linken Bildhälfte die innere Reibung der AT 2-Mode bei 5281 Hz im Temperaturbereich zwischen 70 K und 210 K. Sie weist ein Maximum bei 154 K auf, welches schon in Abbildung 4.16 gezeigt wurde. In der rechten Bildhälfte sind Messdaten der inneren Reibung von $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$, welche von Schrodin bei vier verschiedenen Frequenzen gemessen wurden [Sch14]. Die Temperaturabhängigkeit der inneren Reibung zeigt bei allen Frequenzen qualitativ dasselbe Verhalten. Bei niedrigen Temperaturen wächst die innere Reibung mit steigender Temperatur. Je nach Frequenz kommt es zu einem Maximum zwischen 130 und 150 K. Mit weiter steigender Temperatur reduziert sich die innere Reibung wieder, bevor sie je nach Frequenz ein Minimum zwischen 170 und 185 K aufweist. Man erkennt, dass sich die Temperatur der Maxima (und Minima) mit steigender Frequenz zu höheren Temperaturen hin verschiebt. Nimmt man an, dass die Ursache der erhöhten inneren Reibung auf eine Relaxation zurückzuführen ist die ihren Ursprung in einem thermisch aktivierten Prozess hat, so kann die dazugehörige Relaxationszeit mit der Arrheniusgleichung (2.30) beschrieben werden. Über eine Bestimmung der Temperaturen bei welchen die Maxima auftreten, konnte so eine Aktivierungsenergie von $E_A = (0,36 \pm 0,09)$ eV ermittelt werden [Sch14].

Ein qualitativ ähnliches Verhalten der inneren Reibung in diesem Temperaturbereich konnte auch von Frey bei der Messung von amorphem $Au_{49}Ag_{5,5}Pd_{2,3}Cu_{26,9}Si_{16,3}$ festgestellt werden [Fre14]. Auch dieses Glas wurde bei vier verschiedenen Frequenzen im niedrigen Kiloherzbereich untersucht und es konnte anhand der in diesem Temperaturbereich auftretenden Maxima eine Aktivierungsenergie von $E_A \approx 0,5$ eV ermittelt werden. Im Megahertzbereich fanden Bakai *et al.* Maxima bei der Untersuchung mittels Ultraschall-Absorption in amorphem $Zr_{52,5}Ti_5Cu_{17,9}Ni_{14,6}Al_{10}$ [Bak12]. Die

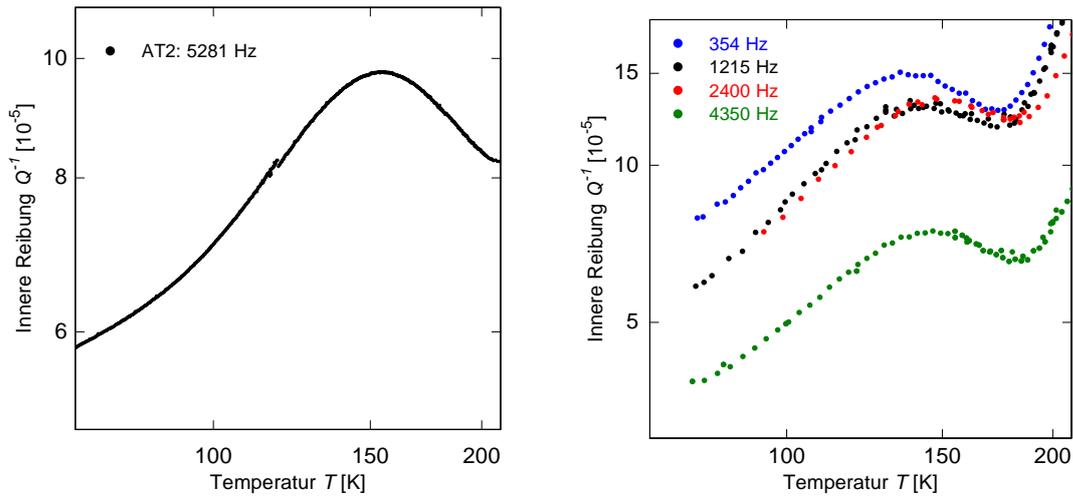


Abb. 4.18: Innere Reibung der AT 2-Mode (links) sowie vier verschiedener Resonanzfrequenzen (rechts) im Temperaturbereich zwischen 80 und 210 K. Die Temperatur der Maxima steigt mit der Frequenz. Nach [Sch14].

verwendeten Messfrequenzen waren 20, 50 und 150 MHz. Dementsprechend traten die Maxima bei höheren Temperaturen auf. Eine Extrapolation der niederfrequenten Messungen zu höheren Frequenzen mit Hilfe der Frequenzabhängigkeit eines Debye-Relaxators und der Relaxationszeit (2.30) ergibt eine gute Übereinstimmung. Die anhand der Ultraschall-Absorptionsmessung ermittelte Aktivierungsenergie betrug $E_A \approx 0,3 \text{ eV}$.

Es soll noch betont werden, dass sich das beobachtete Verhalten der breiten Maxima nicht durch einen Relaxationsmechanismus erklären lässt, der seinen Ursprung in einem thermisch aktivierten Prozess hat, welcher sich mit nur einer einzigen Relaxationszeit beschreiben lässt. Diese würde zu einem viel schlankeren Maximum führen. Stattdessen wird eine breite Verteilung von Relaxationszeiten benötigt. Nimmt man an, dass die Ursache der erhöhten Relaxation thermisch aktiviertes Überwinden von Potentialbarrieren einzelner Atome zwischen den im metallischen Glas vorhandenen Clustern ist, so ist eine breite Verteilung von Relaxationszeiten auf Grund der ungeordneten Struktur durchaus zu erwarten.

Abbildung 4.16 zeigt ein weiteres Maximum der inneren Reibung. Dieses ist in Abbildung 4.19 im Temperaturbereich zwischen 0,5 und 40 K zu sehen. Dargestellt sind die inneren Reibungen der beiden antisymmetrischen Torsionsmoden bei 4536 und 5281 Hz. Unmittelbar unterhalb der Sprungtemperatur T_c steigt die innere Reibung mit sinkender Temperatur. Genau bei T_c weist sie ein Minimum auf. Zu höheren Temperaturen hin folgt ein breites Maximum, welches seinen höchsten Wert bei $T = 13 \text{ K}$ hat. Bei genauer Betrachtung fällt auf, dass sich an der Niedertemperaturflanke des Maximums, unterhalb von etwa 5 K, noch eine „Schulter“ befindet, wo

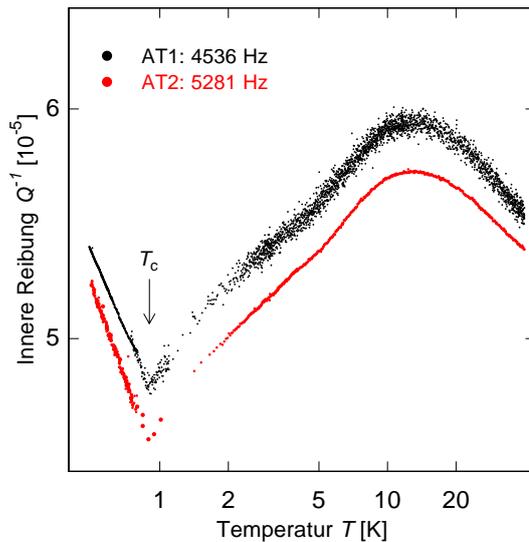


Abb. 4.19: Innere Reibung der beiden antisymmetrischen Torsionsmode AT 1 (4536 Hz) und AT 2 (5281 Hz) in Abhängigkeit von der Temperatur. Im gesamten Temperaturbereich zeigen Messergebnisse dieselbe Temperaturabhängigkeit, wobei die innere Reibung der AT 1-Mode leicht überwiegt.

die innere Reibung zusätzlich erhöht ist. Dies erinnert stark an die zuvor erwähnte Sekundärrelaxation unterhalb von T_g in Abbildung 4.15. Die Messergebnisse beider Frequenzen zeigen dieselbe Temperaturabhängigkeit, wobei der Absolutwert der inneren Reibung der AT 1-Mode leicht überwiegt. Die qualitative Ähnlichkeit gilt auch für die Temperatur des Maximums, wo sich zwischen den beiden Frequenzen kein Unterschied feststellen lässt.

Neben den elastischen Eigenschaften wurde auch die spezifischen Wärme des metallischen Glases $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$ untersucht. Im selben Temperaturbereich in dem sich dieses Maximum der inneren Reibung zeigt, findet sich auch ein Zusatzbeitrag zur spezifischen Wärme. Diesen ermittelte A. Reifenberger bei Wärmekapazitätsmessungen an Proben aus demselben Guss [Rei]. Einen derartigen Zusatzbeitrag findet man sowohl bei dielektrischen, als auch metallischen Gläsern. In der Literatur wird dieser üblicherweise mit Boson-Peak bezeichnet.

4.2.2 Temperaturbereich unterhalb weniger Kelvin

Nachdem im letzten Abschnitt die Messergebnisse analysiert wurden, welche aus dem Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur und einigen Kelvin stammen, folgt eine Analyse der Ergebnisse des Temperaturbereichs unterhalb weniger Kelvin.

Die Vorgehensweise besteht darin die Messdaten im Rahmen des Standardtunnelmodells (STM), welches in Kapitel 2 vorgestellt wurde, zu untersuchen. Sowohl Übereinstimmungen der Daten mit Vorhersagen des STMs, als auch Abweichungen werden analysiert und mögliche Erweiterungen des Modells diskutiert.

Schallgeschwindigkeit bei tiefen Temperaturen

Abbildung 4.20 zeigt die Schallgeschwindigkeitsänderung der antisymmetrischen Torsionsmode 1 in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 10 mK und 2 K. In schwarz sind die Messergebnisse gezeigt, welche mit der kontinuierlichen Messmethode gewonnen wurden. Rote Kreise zeigen die Ergebnisse von Einzelresonanzmessungen, die bei jeweils fester Proben temperatur gemacht wurden. Die Übereinstimmung der

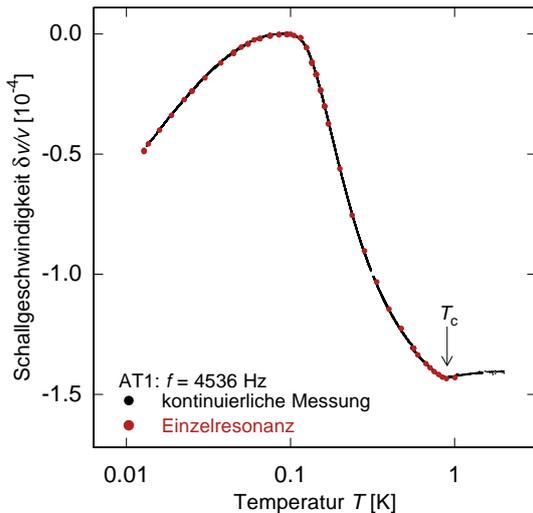


Abb. 4.20: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der antisymmetrischen Torsionsmode 1 in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 10 mK und 2 K. Die mit Hilfe der kontinuierlichen Messmethode gewonnenen Messergebnisse sind in schwarz dargestellt, während die Ergebnisse der Einzelresonanzmessungen durch rote Kreise repräsentiert werden.

Ergebnisse der unterschiedlichen Messmethoden ist im gesamten Temperaturbereich gegeben. Da hiermit gezeigt ist, dass man bei den Messungen der elastischen Eigenschaften mit beiden Methoden zu den gleichen Ergebnissen kommt, reicht es, wenn im Folgenden ausschließlich die Messergebnisse der kontinuierlichen Messungen dargestellt werden.

Von tiefsten Temperaturen bis etwa 30 mK steigt die Schallgeschwindigkeit logarithmisch mit der Temperatur, was sich in der halblogarithmischen Auftragung in Abbildung 4.20 in Form einer Geraden zeigt. Zu höheren Temperaturen hin verringert sich der Anstieg der Schallgeschwindigkeit bis sie bei dieser Eigenmode bei etwa 90 mK ein Maximum erreicht. Mit weiter steigender Temperatur reduziert sich die Schallgeschwindigkeit, bis sie bei der Sprungtemperatur T_c zu einem Minimum kommt. Im Temperaturbereich, in dem das Probenmaterial normalleitend ist, erhöht sich die Schallgeschwindigkeit leicht zu höheren Temperaturen.

Relative Schallgeschwindigkeitsänderung unterschiedlicher Schwingungsmoden Abbildung 4.21 zeigt die Schallgeschwindigkeitsänderung der beiden antisymmetrischen Torsionsmoden AT 1 und AT 2 in Abhängigkeit von der Temperatur. Obwohl die AT 2-Mode mit 5281 Hz bei einer fast 17% höheren Frequenz schwingt als

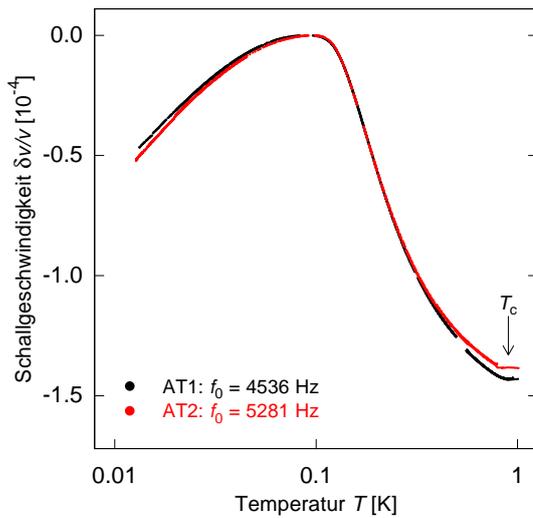


Abb. 4.21: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der beiden antisymmetrischen Torsionsmoden AT 1 (4536 Hz) und AT 2 (5281 Hz) in Abhängigkeit von der Temperatur. Im Temperaturbereich zwischen etwa 90 mK und 300 mK sind die Messergebnisse im Rahmen der Messgenauigkeit identisch.

die AT 1-Mode (4536 Hz), sind die relativen Schallgeschwindigkeitsänderungen beinahe identisch. Im Temperaturbereich zwischen dem Maximum der Schallgeschwindigkeit bei etwa 90 mK und etwa 300 mK lässt sich kein Unterschied feststellen. Im Temperaturbereich unterhalb des Schallgeschwindigkeitsmaximums ist die Verringerung der Schallgeschwindigkeit der AT 2-Mode mit sinkender Temperatur geringfügig stärker. Bei Temperaturen oberhalb von etwa 300 mK hingegen ist die Verringerung der Schallgeschwindigkeit mit steigender Temperatur der AT 1-Mode stärker.

Abbildung 4.22 zeigt die Schallgeschwindigkeitsänderung des DPOs bei drei verschiedenen Schwingungsmoden in Abhängigkeit von der Temperatur. Dargestellt sind

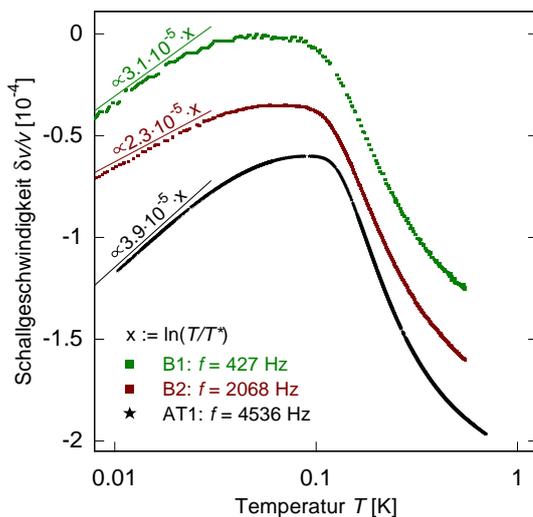


Abb. 4.22: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der Biegemoden B 1 und B 2, sowie der antisymmetrischen Torsionsmode AT 1 in Abhängigkeit von der Temperatur. Zur besseren Unterscheidbarkeit sind die einzelnen Moden jeweils versetzt aufgetragen.

die Biegeschwingungen B 1 und B 2 bei 427 Hz beziehungsweise 2068 Hz, sowie die antisymmetrische Torsionsmode AT 1 bei 4536 Hz. Zur besseren Unterscheidbarkeit wurden Messdaten der AT 2-Mode nicht dargestellt und die anderen Moden jeweils

versetzt aufgetragen.

Während die Torsionsmode mit der induktiven Auslesemethode vermessen wurde, wurden die beiden Biegemoden mit der kapazitiven Messmethode gemessen. Daher und weil externe Störungen tendenziell bei niedrigeren Frequenzen (besonders unterhalb weniger hundert Hertz) stärker sind, ist die Qualität der dargestellten Messdaten der Biegemoden geringer. Die Lücken in den Messdaten bei einzelnen Temperaturen entsteht dadurch, dass jene Messpunkte der kontinuierlichen Messung entfernt wurden, bei denen Ist- und Sollwert der Phasendifferenz ϕ zwischen anregender Kraft und Auslenkung des DPOs stark voneinander abwichen.

Qualitativ zeigen alle drei dargestellten Schwingungsmoden dasselbe Verhalten, welches sich nur in einzelnen Details unterscheidet. Ein Unterschied zwischen den Moden ist die Größe der Schallgeschwindigkeitsänderung. Bei niedrigsten Temperaturen, wo die Schallgeschwindigkeit logarithmisch mit der Temperatur wächst, $\delta v/v \propto \alpha \cdot \ln(T/T^*)$, lassen sich für die einzelnen Moden unterschiedliche Steigungen, $\alpha_{B1} = 3,1 \cdot 10^{-5}$, $\alpha_{B2} = 2,3 \cdot 10^{-5}$ und $\alpha_{AT1} = 3,9 \cdot 10^{-5}$, ermitteln. Neben der Steigung bei niedrigen Temperaturen unterscheiden sich die Moden auch in der Temperatur T_{\max} , bei der die Schallgeschwindigkeit jeweils ein Maximum aufweist. Diese steigt mit wachsender Frequenz. Eine genaue Bestimmung erfolgt in Abschnitt 4.2.2, wenn die Messungen mit der Theorie verglichen werden.

Innere Reibung bei tiefen Temperaturen

Sowohl bei der kontinuierlichen Messung als auch bei den Einzelresonanzen können die Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung gleichzeitig bestimmt werden, wie in Kapitel 3.2.4 erklärt wurde. Die in Abbildung 4.23 gezeigten Messergebnisse der inneren Reibung entstammen derselben Messung wie diejenigen der Schallgeschwindigkeitsänderung in Abbildung 4.20. Sie zeigt die innere Reibung der antisymmetrischen Torsionsmode AT1 in Abhängigkeit von der Temperatur zwischen 10 mK und 2 K. In schwarz sind die Messergebnisse gezeigt, welche mit der kontinuierlichen Messmethode gewonnen wurden. Rote Kreise zeigen wieder die Ergebnisse von Einzelresonanzmessungen, die bei jeweils fester Proben temperatur gemacht wurden. Wie schon bei der Messung der Schallgeschwindigkeitsänderung ist eine Übereinstimmung der Ergebnisse der unterschiedlichen Messmethoden im gesamten Temperaturbereich gegeben.

Von tiefsten Temperaturen bis etwa 30 mK steigt die innere Reibung stark mit der Temperatur an und folgt dabei annähernd einem Potenzgesetz. Mit weiter steigender Temperatur verlangsamt sich der Anstieg der inneren Reibung bis etwa 110 mK. Zwischen 110 mK und dem Maximum, welches bei 168 mK eintritt, zeigt sich eine „Schulter“ in der inneren Reibung. Anschließend reduziert sich die innere Reibung, bis sie bei der Sprungtemperatur T_c zu einem Minimum in Form eines Knicks kommt. Im

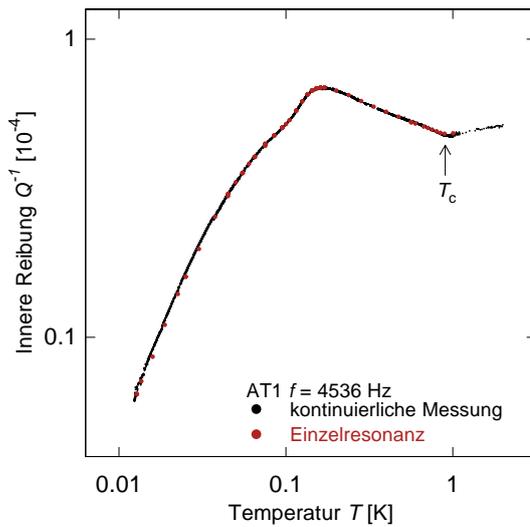


Abb. 4.23: Innere Reibung der AT1-Mode in Abhängigkeit von Temperatur zwischen 10 mK und 2 K. Die mit Hilfe der kontinuierlichen Messmethode gewonnenen Messergebnisse sind in schwarz dargestellt, während die Ergebnisse der Einzelresonanzmessungen durch rote Kreise repräsentiert werden.

Temperaturbereich, in dem das Probenmaterial normalleitend ist, steigt die innere Reibung wieder leicht mit steigender Temperatur.

Innere Reibung unterschiedlicher Schwingungsmoden Abbildung 4.21 zeigt die innere Reibung der beiden antisymmetrischen Torsionsmoden AT1 und AT2 in Abhängigkeit von der Temperatur. Im gesamten Temperaturbereich zeigen die

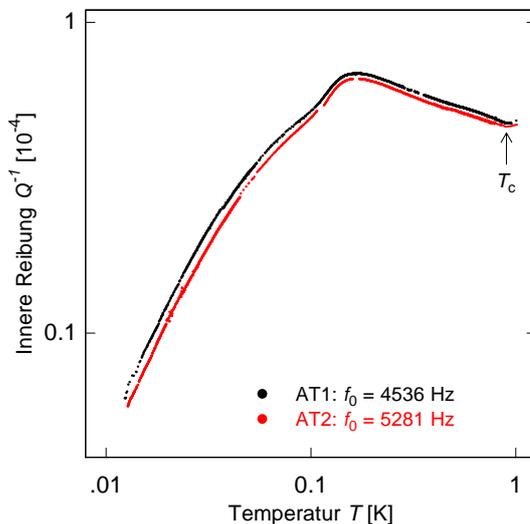


Abb. 4.24: Innere Reibung der beiden antisymmetrischen Torsionsmoden AT1 (4536 Hz) und AT2 (5281 Hz) in Abhängigkeit von der Temperatur.

Messergebnisse dieselbe Temperaturabhängigkeit. Einzig der Absolutwert der inneren Reibung der AT1-Mode überwiegt leicht. Die Wendepunkte und Maxima der jeweiligen Datensätze sind jeweils bei annähernd derselben Temperatur.

Abbildung 4.25 zeigt die innere Reibung des DPOs bei drei verschiedenen Schwingungsmoden in Abhängigkeit von der Temperatur unterhalb von T_c . In Abbildung 4.22

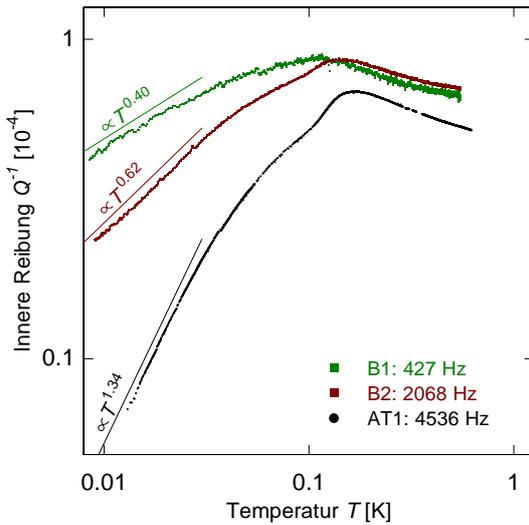


Abb. 4.25: Innere Reibung der Biegemoden B 1 (427 Hz) und B 2 (2068 Hz), sowie der antisymmetrischen Torsionsmode AT 1 (4536 Hz) in Abhängigkeit von der Temperatur.

sind die Biegeschwingungen B 1 und B 2 sowie Torsionsmode AT 1 dargestellt. Wie zuvor wurden zur besseren Unterscheidbarkeit Messdaten der AT 2-Mode nicht dargestellt.

Die dargestellten Schwingungsmoden zeigen qualitativ dasselbe Verhalten. Von tiefsten Temperaturen bis etwa 30 mK steigen die inneren Reibungen mit der Temperatur an und folgen dabei ungefähr einem Potenzgesetz, $Q^{-1} \propto T^\beta$. Die Potenz variiert allerdings von Mode zu Mode, wobei $\beta_{B1} = 0,4$, $\beta_{B2} = 0,62$ und $\beta_{AT1} = 1,34$ ist. Die Maxima der einzelnen Moden sind mit steigender Frequenz zu höheren Temperaturen verschoben. Während das Maximum der inneren Reibung der AT 1-Mode bei 168 mK liegt ist es bei der B 2-Mode bei etwa 143 mK und bei der B 1-Mode bei etwa 112 mK. Bei Temperaturen oberhalb der jeweiligen Maxima nimmt die innere Reibung mit steigender Temperatur ab, wobei die Reduktion genau wie der Anstieg bei niedrigsten Temperaturen von Mode zu Mode variiert.

Vorhersagen des STMs

Abbildung 4.26 zeigt die relative Schallgeschwindigkeitsänderung der AT 1-Mode zwischen 10 mK und 1,5 K, wie sie schon in Abbildung 4.20 vorgestellt wurde. Zusätzlich ist die Vorhersage des STMs eingezeichnet, welche mit numerischen Rechnungen erstellt wurde (siehe Abschnitt 2.3.6). Die durchgezogene blaue Linie zeigt die numerische Berechnung des STMs, wobei die makroskopische Kopplungskonstante C aus (2.49), die den Absolutwert der logarithmischen Steigung bestimmt, ein freier Parameter war. Gleiches gilt für die Temperatur des Maximalwerts der Schallgeschwindigkeit, welche nach (2.54) mit der Messfrequenz und einigen Materialparametern verknüpft ist. Die Steigung wurde so gewählt, dass die numerische Anpassung mit

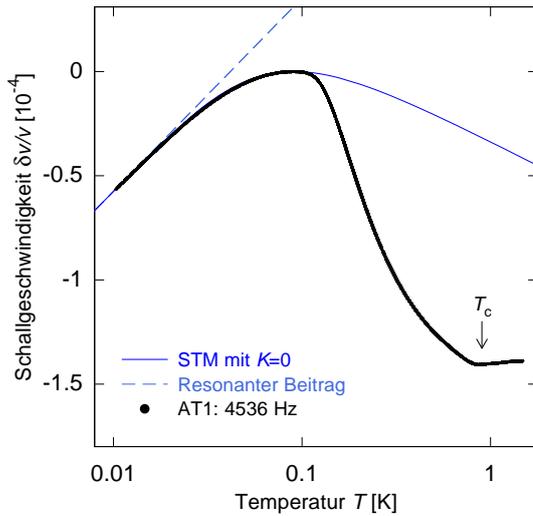


Abb. 4.26: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich ist in blau eine numerische Berechnung des STMs eingezeichnet, bislang ohne Berücksichtigung des Einflusses der Elektronen und Quasiteilchen. Die gestrichelte Linie zeigt den resonanten Beitrag.

den Messergebnissen bei niedrigsten Temperaturen zusammenfällt. Auch die Temperatur T_{\max} , bei der die Schallgeschwindigkeit maximal wird, wurde so gewählt, dass sie mit derjenigen der Messdaten übereinstimmt.

Zur Orientierung ist zusätzlich auch der resonante Beitrag zur Schallgeschwindigkeitsänderung mit einer gestrichelten Linie dargestellt. Dieser fällt bei niedrigsten Temperaturen folgerichtig auch mit den Messdaten zusammen, da in diesem Temperaturbereich der Beitrag der Relaxation zur Schallgeschwindigkeit vernachlässigbar gering ist. Zu höheren Temperaturen hin wird dieser immer wichtiger, weshalb sich die Zunahme der Schallgeschwindigkeit verlangsamt und sie sich nach Durchlaufen eines Maximums wieder reduziert. In diesem Temperaturbereich, oberhalb des Maximums, laufen Vorhersage und Messergebnisse auseinander. Dies ist nicht verwunderlich, da der Beitrag der Leitungselektronen und der Quasiteilchen zur Relaxation zunächst unberücksichtigt blieb.

Einfluss der Elektronen und Quasiteilchen zur Relaxation

Will man den Betrag der Elektronen und Quasiteilchen zur Relaxation berücksichtigen, kommt zur Relaxationsrate des Ein-Phonon-Prozesses (2.34) diejenige auf Grund der Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Elektronen (2.40) beziehungsweise zwischen Tunnelsystemen und Quasiteilchen (2.43) hinzu. Die beiden letztgenannten Beiträge enthalten die dimensionslose Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante K , die in (2.40) eingeführt wurde. Sie ist ein Maß für die Stärke der Kopplung zwischen Tunnelsystemen und Elektronen beziehungsweise Quasiteilchen. Ihr Wert liegt zwischen 0 und 0,5 [Yam84]. Da der genaue Wert unbekannt ist, kann er als weiterer freier Parameter (in den Grenzen $0 < K \leq 0,5$) behandelt werden.

Abbildung 4.27 zeigt numerische Berechnung der Vorhersagen des STMs zur Schall-

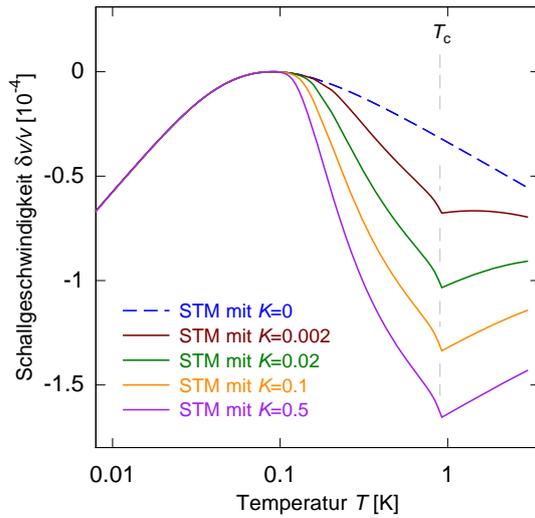


Abb. 4.27: Berechnete Schallgeschwindigkeitsänderung gemäß des STMs unter Berücksichtigung zusätzlicher Relaxation auf Grund von Elektronen und Quasiteilchen in Abhängigkeit von der Temperatur. Eine größere Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante K führt zu einem größeren zusätzlichen Relaxationsbeitrag.

geschwindigkeitsänderung unter Berücksichtigung zusätzlicher Relaxation auf Grund von Elektronen und Quasiteilchen. Als gestrichelte Linie ist wieder die numerische Berechnung der Schallgeschwindigkeitsänderung dargestellt, bei der die Relaxation ausschließlich über den Ein-Phonon-Prozess abläuft (2.50). Man erkennt in der logarithmischen Auftragung das vorhergesagte Steigungsverhältnis in der Schallgeschwindigkeit von 2 zu -1, wie es schon in Abbildung 2.24 zu sehen ist. Zusätzlich sind vier weitere numerische Berechnungen der Schallgeschwindigkeitsänderung gemäß Gleichungen (2.47) und (2.50) mit (2.34) und (2.43) dargestellt, bei denen die Relaxation auf Grund von Elektronen und Quasiteilchen einen zunehmend größeren Beitrag liefert. Dies wird hier durch eine Variation der Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante erreicht, welche als Parameter Werte zwischen 0,002 und 0,5 annimmt.

Qualitativ zeigt sich für alle dargestellten Berechnungen mit $K > 0$ dasselbe Verhalten. Im Temperaturbereich oberhalb von T_c führt die zusätzliche Relaxation zu einer stark reduzierten Schallgeschwindigkeit. Unterhalb von T_c erhöht sich die Schallgeschwindigkeit mit sinkender Temperatur, bis sie wieder den Wert annimmt, den sie ohne Quasiteilcheneinfluss hat. Dies geschieht bei etwa 110 mK, etwas oberhalb der Temperatur bei der die Schallgeschwindigkeit ihren maximalen Wert erreicht.

Wie schon in Abbildung 4.26 ist in Abbildung 4.28 die gemessene Schallgeschwindigkeitsänderung der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. In dieser Abbildung sind zusätzlich numerische Berechnungen basierend auf dem STM unter Berücksichtigung zusätzlicher Relaxation auf Grund von Elektronen und Quasiteilchen eingezeichnet, wie sie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben wurden. Besonders hervorgehoben ist jene, bei welcher die Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante $K = 0,45$ beträgt. Man erkennt eine hervorragende Übereinstimmung der Messdaten mit der Vorhersage in einem weiten Temperaturbereich. Wie schon in

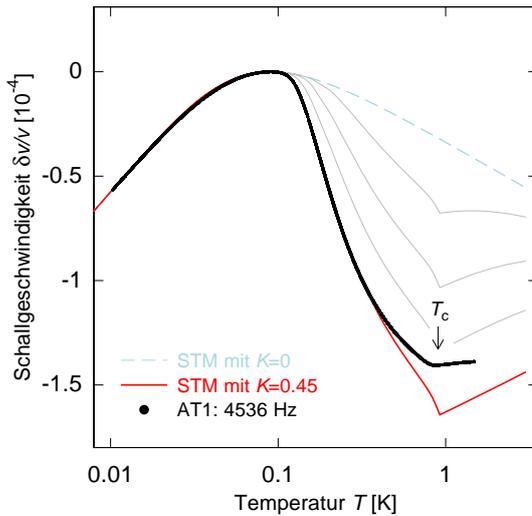


Abb. 4.28: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich sind numerische Berechnungen der Schallgeschwindigkeitsänderung eingezeichnet. Besonders hervorgehoben ist jene, bei der die Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante $K = 0,45$ beträgt.

Abbildung 4.26 ersichtlich, fallen die Kurven unterhalb von etwa 110 mK – also im Temperaturbereich in dem der Beitrag der Relaxation zur Schallgeschwindigkeitsänderung vernachlässigbar gering ist – zusammen. Bei der Vorhersage mit $K = 0,45$, welche die Messdaten am besten beschreibt, gibt es eine lückenlose Übereinstimmung bis etwa 350 mK. Zu noch höheren Temperaturen hin zeigt sich eine leichte Diskrepanz. Besonders der Temperaturbereich bei und oberhalb von T_c wird mit dieser Vorhersage nicht gut beschrieben.

Bevor der Einfluss der Quasiteilchen auf die Relaxation näher analysiert wird, wollen wir zunächst die Vorhersagen des STMs zur inneren Reibung mit den dazugehörigen Messdaten vergleichen.

In Abbildung 4.29 sind, wie schon in Abbildung 4.27, numerische Berechnungen des STMs mit unterschiedlich starker Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante dargestellt. In diesem Fall Vorhersagen für die innere Reibung, zu welcher resonante Prozesse in diesem Temperaturbereich keinen Beitrag liefern. Die Kopplungskonstante K wurde wieder zwischen 0,002 und 0,5 variiert. Gestrichelt ist die Vorhersage für den Fall dargestellt, dass Quasiteilchen nicht zur Relaxation beitragen. Bei höchsten Temperaturen zeigt sich ein Plateau in der inneren Reibung, welche sich bereits oberhalb von 1 K mit sinkender Temperatur reduziert und schließlich proportional zu T^3 wird. Durch den zusätzlichen Beitrag der Quasiteilchen zur Relaxation erstreckt sich das Plateau im Fall $K \neq 0$ zu niedrigeren Temperaturen. Die genaue Form hängt von der Stärke der Kopplungskonstante ab, wobei unterhalb von etwa 110 mK bei allen Kurven wieder ausschließlich der Einfluss der Tunnelsystem-Phonon-Wechselwirkung zur Relaxation sichtbar ist.

Den Vergleich zwischen Messdaten der inneren Reibung und numerischen Berechnungen des STMs und zeigt Abbildung 4.30. Unterteilen wir zur Analyse den hier dargestellten Temperaturbereich in drei Abschnitte. Im Niedrigtemperaturbereich

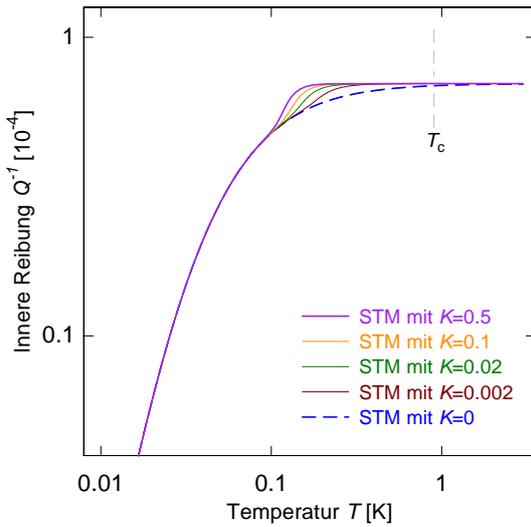


Abb. 4.29: Berechnete innere Reibung gemäß des STMs unter Berücksichtigung zusätzlicher Relaxation auf Grund von Elektronen und Quasiteilchen in Abhängigkeit von der Temperatur. Eine größere Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante K führt zu einem zu niedrigeren Temperaturen ausgedehnten Plateau.

a), der sich bis zu etwa 110 mK erstreckt, zeigen die Messdaten bei dieser Mode eine $T^{1,34}$ -Abhängigkeit der inneren Reibung bei niedrigsten Temperaturen, wohingegen das Model eine T^3 -Abhängigkeit voraussagt. Im Hochtemperaturbereich c) oberhalb von etwa 170 mK betrachten wir die Vorhersage, bei der die Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante $K = 0,45$ beträgt. Sie ist mit einer roten Linie besonders hervorgehoben. Sie zeigt das vom Model vorhergesagte temperaturunabhängige Plateau. Die gemessene innere Reibung reduziert sich hingegen zwischen etwa 170 mK und T_c bei 900 mK mit steigender Temperatur. Genau bei T_c hat sie ein scharfes Minimum und wächst anschließend mit steigender Temperatur. Im Temperaturbereich b), zwischen etwa 110 und 170 mK, – der dadurch gekennzeichnet ist, dass hier das Plateau der inneren Reibung endet, welches von der Vorhersage mit $K = 0,45$

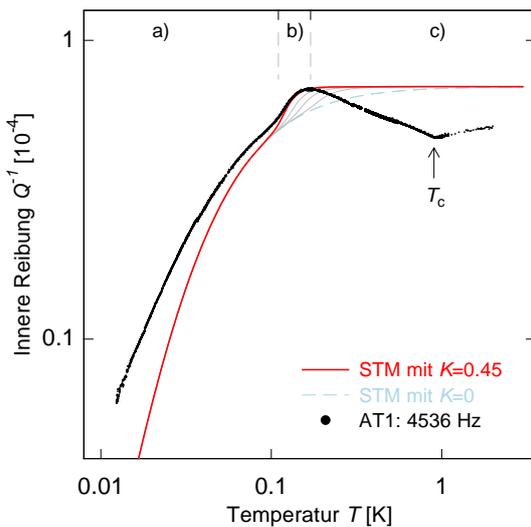


Abb. 4.30: Innere Reibung der AT1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich sind numerische Berechnungen des STMs eingezeichnet. Jene, bei der die Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante $K = 0,45$ beträgt beschreibt die Messdaten im Temperaturbereich zwischen etwa 110 und 170 mK.

stammt – zeigt sich eine gute Übereinstimmung von Messdaten und Vorhersage. In diesem Temperaturbereich werden beide Messgrößen, $\delta v/v$ und Q^{-1} , gut vom STMs beschrieben, wenn eine zusätzliche Relaxation über Quasiteilchen gemäß BCS berücksichtigt wird. Da die Temperatur bekannt ist, bei der die Probe in den supralei-

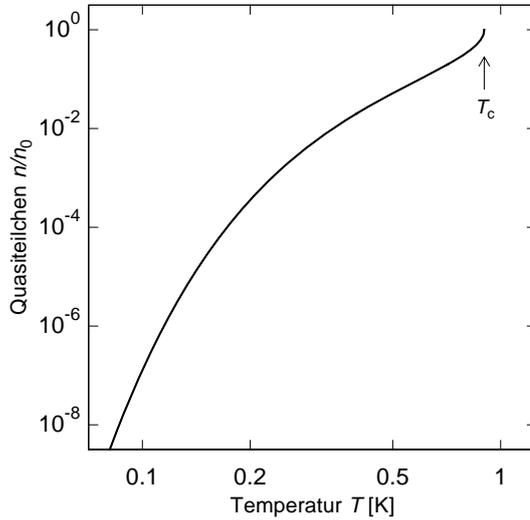


Abb. 4.31: Relativer Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen unterhalb von $T_c = 0,9$ K nach der BCS-Theorie in Abhängigkeit von der Temperatur.

tenden Zustand übergeht, ist es möglich den Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen zu bestimmen. Mit der temperaturabhängigen Energielücke $\Delta_{\text{BCS}}(T)$, die sich mit (2.41) und (2.42) berechnen lässt und die in Abbildung 2.22 dargestellt ist, kann mit Hilfe des Boltzmann-Faktors der Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen zu

$$\frac{n}{n_0} = e^{\frac{-\Delta_{\text{BCS}}(T)}{k_B T}} \quad (4.9)$$

berechnet werden. Abbildung 4.31 zeigt den relativen Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen in der Probe, wie er nach (4.9) berechnet wurde. Direkt unterhalb von T_c bei 900 mK reduziert sich ihr Anteil schnell mit sinkender Temperatur. Bei 340 mK sind es nur noch 1% und bei 115 mK hat sich ihr Anteil auf 10^{-6} reduziert. Der schwindende Anteil wird in Abbildung 4.32 anhand der Messdaten zur Schallgeschwindigkeit und inneren Reibung sichtbar. Neben den bereits bekannten Messungen und Vorhersagen des STMs sind im Temperaturbereich zwischen 115 mK und T_c bei 900 mK der relative Anteil noch vorhandener thermisch aktivierter Quasiteilchen gekennzeichnet. Mit deren Verringerung mit sinkender Temperatur reduziert sich auch der zusätzliche Relaxationsbeitrag auf Grund von Tunnelsystem-Quasiteilchen-Wechselwirkung. Sowohl bei den Daten zur Schallgeschwindigkeitsänderung (links), als auch denen zur inneren Reibung (rechts) ist ersichtlich, dass dieser Beitrag erst bei einem Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen kleiner 10^{-6} vernachlässigbar gering ist und die Relaxation auf Grund von Tunnelsystem-Phonon-Wechselwirkung bei weiter sinkender Temperatur dominiert.

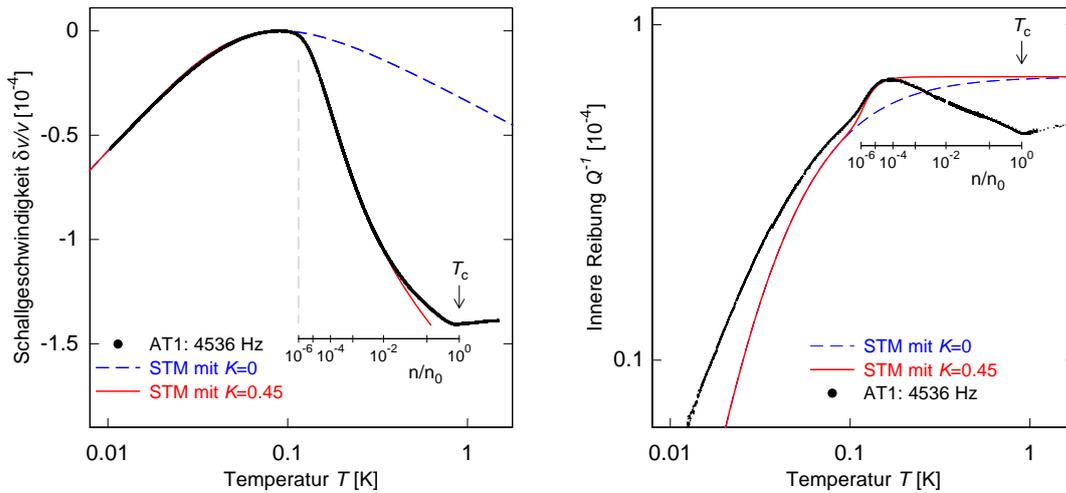


Abb. 4.32: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich sind numerische Berechnungen für die jeweilige Größe eingezeichnet. Gestrichelt ohne Quasiteilchen/Elektron-Tunnelsystem-Wechselwirkung, mit durchgezogener Linie für den Fall, dass die Kopplungskonstante $K = 0,45$ beträgt. Im Temperaturbereich zwischen 115 mK und T_c bei 900 mK ist außerdem der relative Anteil noch vorhandener thermisch aktivierter Quasiteilchen gekennzeichnet.

Abweichungen zum Standardtunnelmodell

Wie man im rechten Teil der Abbildung 4.32 sehen kann, beschreibt die Vorhersage des STMs – auch unter Berücksichtigung zusätzlicher Relaxation durch Quasiteilchen und Elektronen – die gemessene innere Reibung nicht in allen Temperaturbereichen. Zum einen steigt die innere Reibung bei niedrigsten Temperaturen weniger schnell mit zunehmender Temperatur als vorhergesagt, zum anderen erwartet man ein temperaturunabhängiges Plateau bei hohen Temperaturen, wohingegen in den Messdaten ein Minimum bei T_c erscheint. Diese Abweichung ist stringent zu jener, welche um T_c bei der Schallgeschwindigkeit auftritt. In beiden Fällen ist der tatsächlich auftretende Relaxationsbeitrag in diesem Temperaturbereich geringer, als vom Modell in dieser Form angenommen.

Weitere Abweichungen zeigen sich bei der Betrachtung der anderen Moden. Abbildung 4.33 zeigt die relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der B 1- und der B 2-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Während man die Messung der B 1-Mode unterhalb von etwa 350 mK gut mit der Vorhersage des STMs beschreiben kann, wenn man eine Tunnelsystem-Elektron-Kopplungskonstante von $K = 0,3$ und ein Maximum bei $T = 52$ mK annimmt, so ist dies für die B 2-Mode nicht möglich. Auch mit einem maximal angenommenen Wert von $K = 0,5$ ergibt sich kein ausreichend großer zusätzlicher Relaxationsbeitrag. Die

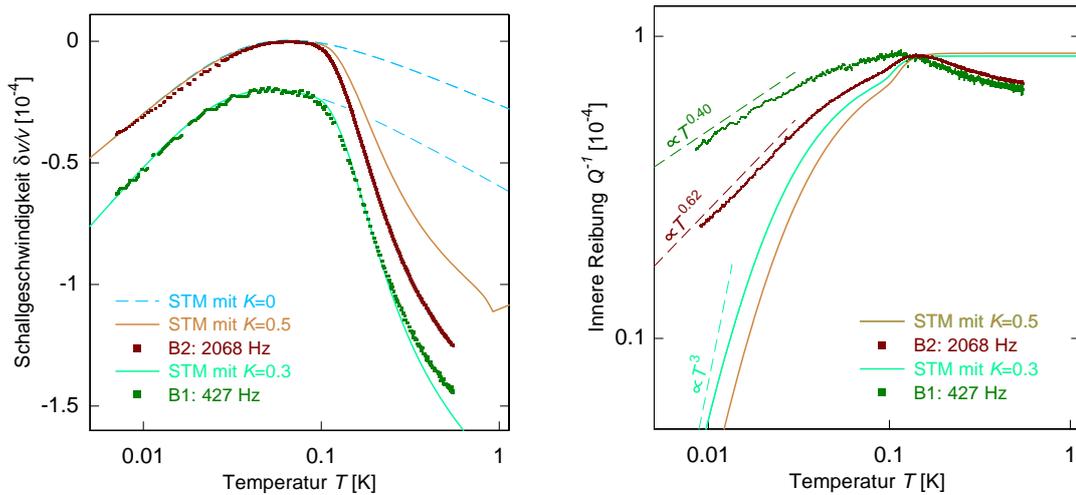


Abb. 4.33: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der B1- und der B2-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich sind numerische Berechnungen für die jeweilige Größe eingezeichnet. Gestrichelt ohne Quasiteilchen/Elektron-Tunnelsystem-Wechselwirkung, mit durchgezogener Linie für den Fall, dass die Kopplungskonstante $K = 0,5$ (braun) und $K = 0,3$ (grün) beträgt.

hier dargestellte Kurve, bei der ein Maximum bei $T = 66$ mK angenommen wurde, zeigt eine langsamere Reduktion der Schallgeschwindigkeit mit steigender Temperatur, als die entsprechenden Messdaten.

In der rechten Bildhälfte zeigen sich die im vorherigen Absatz angesprochenen Abweichungen zwischen numerischen Berechnungen und Messdaten der inneren Reibung auch für die B1- und die B2-Mode. Das Modell sagt einen Anstieg von $Q^{-1} \propto T^3$ unabhängig von der Frequenz voraus, während der Anstieg für die B1-Mode bei $Q^{-1} \propto T^{0,4}$ und der B2-Mode bei etwa $Q^{-1} \propto T^{0,6}$ liegt.

Eine weitere Diskrepanz wird ersichtlich, wenn man die beiden Messgrößen gemeinsam betrachtet. Bis jetzt wurden die Anpassungen unabhängig an die jeweiligen Messdaten vorgenommen. Über die makroskopische Kopplungskonstante C (2.49) sind sie jedoch miteinander verbunden. Nach (2.48) werden die Steigung der Niedrigtemperaturflanke von $\delta v/v$ und der Plateauwert von Q^{-1} dividiert durch $\pi/2$ (2.61) von derselben Konstante C beschrieben. Abbildung 4.34 zeigt die relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der AT1-Mode. Zusätzlich sind jeweils zwei Berechnungen nach dem STM eingezeichnet. Die Theoriekurven identischer Farbe wurden mit demselben Parametersatz berechnet. Während die blauen Kurven aus einer Anpassung an $\delta v/v$ stammen, rühren die roten Kurven aus einer Anpassung an Q^{-1} her. Die auftretenden Diskrepanzen sind augenfällig. Hält man sich an die rote Anpassung, bei welcher der Plateauwert von Q^{-1} anhand des Maximalwerts ermittelt wurde, ergibt sich eine zu steile Schallgeschwindigkeitsänderung.

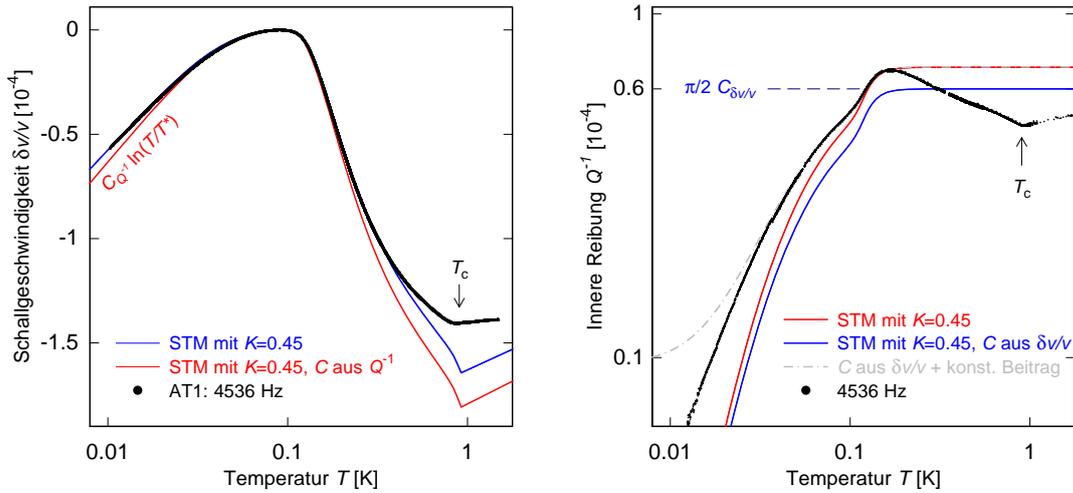


Abb. 4.34: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der AT 1-Mode, sowie numerische Berechnungen in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Steigung der Niedrigtemperaturflanke von $\delta v/v$ und der Plateauwert von Q^{-1} sind über die makroskopische Kopplungskonstante C (2.49) miteinander verbunden. Die jeweils gleich gefärbten Theoriekurven sind mit demselben Wert für C berechnet, wie man ihn anhand der Anpassungen erhält. Blau ist eine Anpassung an $\delta v/v$ (2.48) und rot eine Anpassung an Q^{-1} (2.61). Die strichpunktierte graue Berechnung entspricht der blauen unter Addition eines fiktiven konstanten Zusatzbeitrags.

Entsprechend führt die blaue Anpassung, welche die Daten von $\delta v/v$ beschreibt, zu einem zu niedrigen Wert für das Plateau von Q^{-1} . Dass der Plateauwert nur deshalb zu niedrig ist, weil ein Zusatzbeitrag von Q^{-1} nicht berücksichtigt worden ist, welcher beispielsweise von der DPO-Einspannung herrühre, kann anhand der grauen strichpunktierten Linie ausgeschlossen werden. Diese zeigt eine Berechnung der inneren Reibung, welche mit den selben Parametern wie die in blau dargestellte, berechnet wurde unter Addition eines fiktiven konstanten Zusatzbeitrags. Ein solcher, hier komplett temperaturunabhängig angenommener, Beitrag würde bei $T > 30$ mK bis zum Maximalwert die Übereinstimmung nahezu perfekt machen. Im Limes tiefer Temperaturen müsste ein solcher Beitrag zur inneren Reibung allerdings abnehmen, um die Messdaten wirklich zu beschreiben. Zu prüfen wäre zunächst, ob die Wechselwirkung zwischen Tunnelsystemen und Kernmomenten einen solchen Relaxationsmechanismus bewirken kann.

Vergleich mit elastischen Eigenschaften von $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ Dass die beschriebenen Diskrepanzen nicht ausschließlich bei den im Rahmen dieser Arbeit angefertigten Messungen auftreten, kann anhand der Abbildungen 4.35 und 4.36 gezeigt werden. Dort sind die relative Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung von

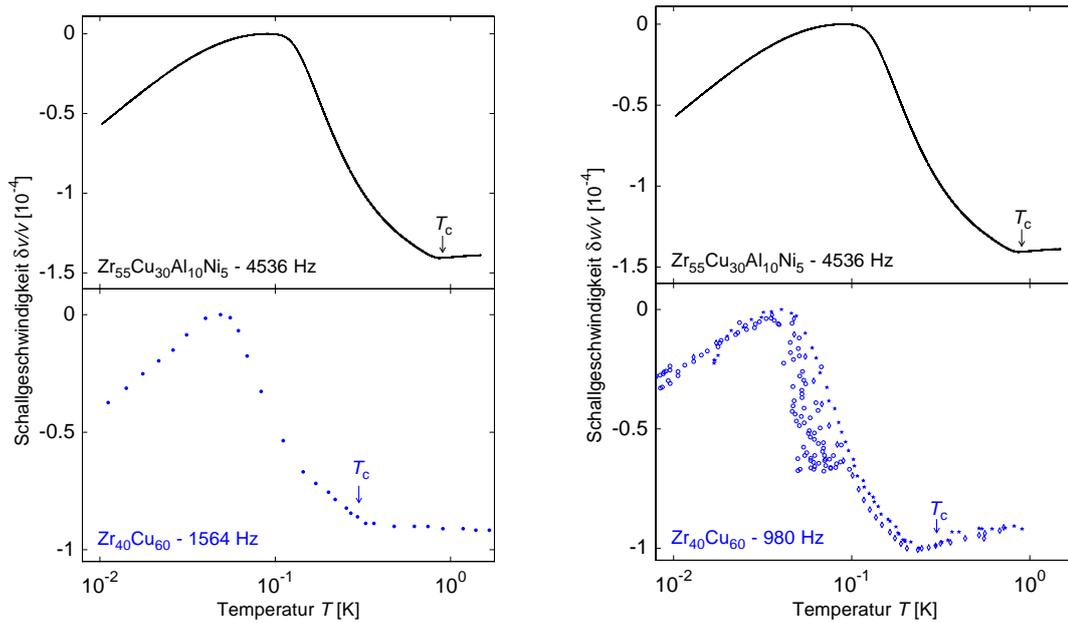


Abb. 4.35: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung gemessen bei 1564 Hz (links) [Ray84] und 980 Hz (rechts) [Kön02]. Die Sprungtemperatur der Legierung $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ ist 300 mK. Zum Vergleich sind eigene Messungen an $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ gezeigt, bei dem T_c bei 900 mK liegt.

$\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ dargestellt, wie sie von Raychaudhuri *et al.* bei 1564 Hz und König *et al.* bei 980 Hz gemessen wurden. Die Sprungtemperatur der Legierung $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ liegt bei 300 mK, während diejenige von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ bei 900 mK liegt. Die Daten zeigen eine qualitativ ähnliche Temperaturabhängigkeit zu den ebenfalls eingezeichneten eigenen Messdaten. Auf Grund der unterschiedlichen Sprungtemperaturen sind die Daten von $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ scheinbar zu niedrigeren Temperaturen hin verschoben. Die charakteristischen Merkmale sind jedoch ersichtlich. In beiden Messungen steigt die Schallgeschwindigkeit, welche in Abbildung 4.35 gezeigt ist, von niedrigsten Temperaturen mit steigender Temperatur an, bevor sie sich nach Durchschreiten eines Maximums (bei etwa 40 mK bei 980 Hz und etwa 48 mK bei 1564 Hz) wieder deutlich reduziert. Diese Verringerung endet jeweils abrupt bei T_c und setzt sich zu höheren Temperaturen mit flacherer Steigung fort.

Auch bei den Messdaten der inneren Reibung von $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$, dargestellt in Abbildung 4.36, finden sich vergleichbare Merkmale zu denen von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$. Bei niedrigsten Temperaturen erhöht sich die innere Reibung mit steigender Temperatur und reduziert sich nach Durchschreiten eines Maximums wieder. Bei den Messdaten von Raychaudhuri *et al.* kann man sogar den zusätzlichen Relaxationsbeitrag auf Grund von Quasiteilchen erkennen. Die Reduktion der inneren Reibung oberhalb der Temperatur des Maximums endet bei T_c und erhöht sich anschließend wieder

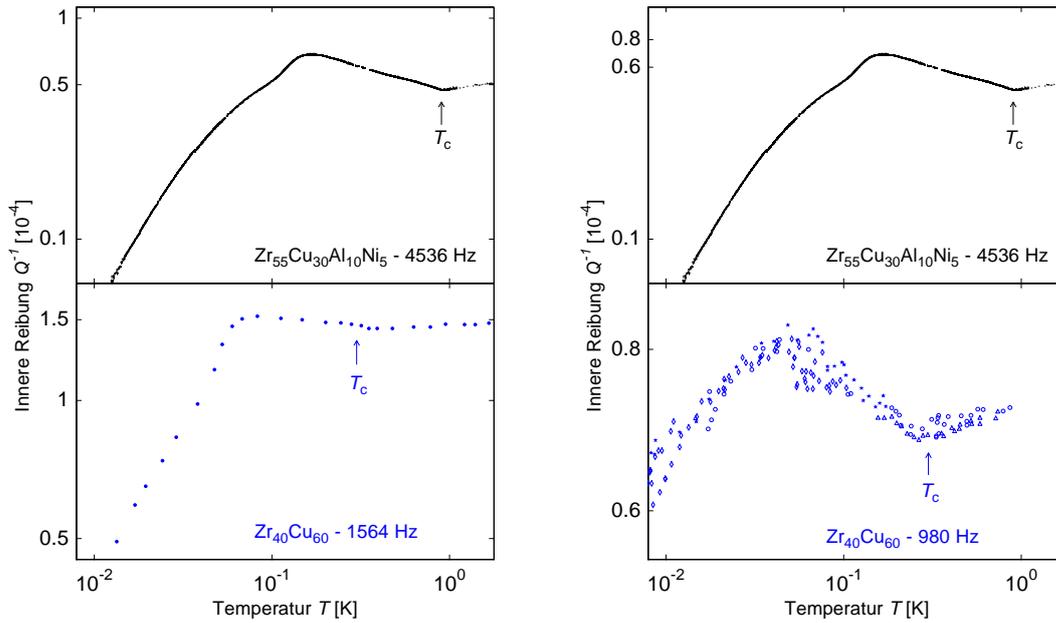


Abb. 4.36: Innere Reibung von $\text{Zr}_{40}\text{Cu}_{60}$ gemessen bei 1564 (links) [Ray84] und 980 Hz (rechts) [Kön02], sowie eigene Messungen an $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$. Die Messungen zeigen eine qualitativ ähnliche Temperaturabhängigkeit. Im Besonderen zeigt sich ein Minimum bei T_c des jeweiligen Materials.

mit steigender Temperatur, sodass bei T_c das charakteristische lokale Minimum in der inneren Reibung auftritt, welches nicht vom STM vorausgesagt wird. Vergleicht man die Kopplungskonstanten C , welche man anhand der Tieftemperatursteigung von $\delta v/v$ und dem Maximalwert von Q^{-1} ermittelt, zeigt sich, dass jene über die innere Reibung ermittelte um 60 % ([Kön02]) beziehungsweise 70 % ([Ray84]) größer ist.

Die in den vergangenen Abschnitten analysierten Merkmale, wie die geringe Schallgeschwindigkeitsänderung bei und oberhalb von T_c , das scharfe Minimum bei T_c in der inneren Reibung und die Diskrepanz zwischen dem anhand der beiden Messgrößen ermittelten Wert für die makroskopische Kopplungskonstante C zeigen sich bei allen präsentierten Messungen. Dies deutet darauf hin, dass es zumindest noch einen zusätzlichen temperaturabhängigen Relaxationsbeitrag geben muss. Im Temperaturbereich um die Sprungtemperatur hingegen muss dieser Beitrag reduziert sein, was zu dem Minimum der inneren Reibung bei T_c führt. Diese Punkte zeigen, dass das STM nicht alle Aspekte der elastischen Eigenschaften von metallischem Glas vollständig beschreibt. Betrachtet man hingegen Abbildung 4.32, kann aber festgestellt werden, dass ein auf nur so wenigen Annahmen beruhendes Modell wie das STM unter Berücksichtigung der Zusatzrelaxation über Elektronen und eines BCS-artigen supraleitenden Phasenübergang, die Messdaten erstaunlich präzise beschreibt.

4.2.3 Erweiterung des Standardtunnelmodells

Weil es auch bei dielektrischen Gläsern und den Ergebnissen anderer Messmethoden Abweichungen gab, wurden mehrere Erweiterungen des Standardtunnelmodells erwogen, um eine Antwort auf einzelne der beschriebenen Abweichungen zwischen Theorie und Messung zu geben. Da der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit die Untersuchung elastischer Eigenschaften von supraleitendem metallischen Glas ist, soll hier nur auf eine näher eingegangen werden, die sich explizit mit dem Einfluss der Elektronen und Quasiteilchen auf die Zustandsdichte der Tunnelsysteme in metallischen Gläsern befasst.

Kagan und Prokof'ev erläutern in der von ihnen vorgestellten Erweiterung des STMs, auf welche Weise der Elektron-Polaron-Effekt die Tunnelparameter der Tunnelsysteme renormieren kann [Kag87, Kag88]. Dieser Ansatz beruht auf einer Idee Kondos. Dieser legte 1976 dar, dass die Tunnelgeschwindigkeit von Atomen in Metallen auf Grund der Anwesenheit von Leitungselektronen reduziert sei, da diese der Bewegung des Atoms nicht instantan folgen können [Kon76]. Dieses führt zu einer Renormierung des Tunnelparameters Δ_0 . Kagan und Prokof'ev führen unter anderem aus, dass die Renormierung des Tunnelparameters von der Energielücke Δ_{BCS} , der Asymmetrienergie Δ und der Temperatur abhängt.

Abbildung 4.37 zeigt im linken Bild die Vorhersage der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung eines metallischen Glases, das unterhalb von T_c supraleitend wird, unter Berücksichtigung einer renormierten Tunnelaufspaltung [Kag88]. In der Vor-

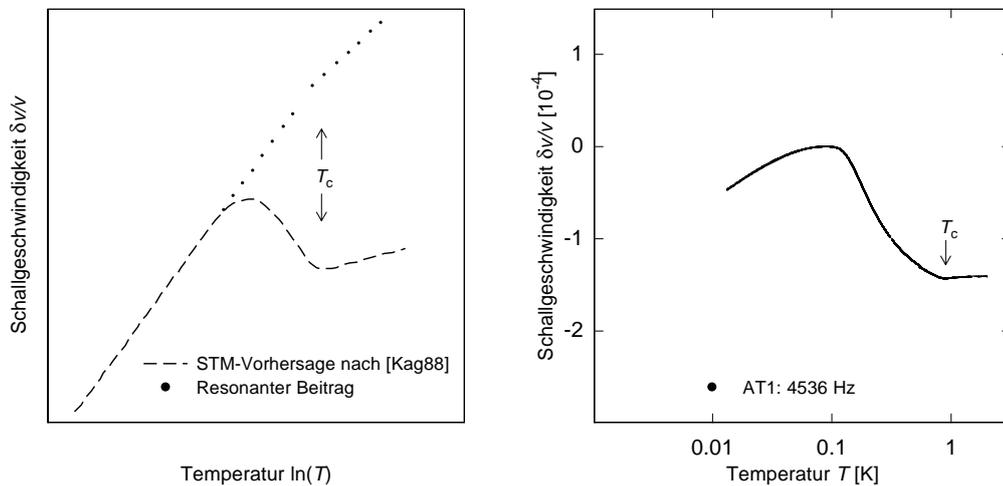


Abb. 4.37: Vorhersage der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung unter Berücksichtigung einer renormierten Tunnelaufspaltung nach [Kag88] (links), sowie Messdaten der AT 1-Mode (rechts) in Abhängigkeit von der Temperatur. Neben einer temperatur- und frequenzabhängigen minimalen Tunnelaufspaltung führt die Renormierung zu einem reduzierten resonanten Beitrag bei Temperaturen oberhalb von T_c .

hersage ist zudem mit einer gepunkteten Linie der resonante Beitrag angedeutet. Man erkennt, dass sich dieser oberhalb von T_c als Konsequenz der Renormierung reduziert. Anders ausgedrückt bedeutet dies, dass die Zustandsdichte der zum Messsignal beitragenden Tunnelsysteme im normalleitenden Zustand und im supraleitenden Zustand verschieden ist.

Im rechten Bild sind zum Vergleich die Messdaten der AT 1-Mode dargestellt. Vergleicht man die Vorhersage mit den Ergebnissen der Messung, so zeigt sich eine große Ähnlichkeit. Besonders hervorzuheben ist das Ausbleiben eines scharfen Minimums bei T_c . Stattdessen zeigt sich in der Schallgeschwindigkeit ein sacher Übergang bei der Sprungtemperatur, wie man in beiden Bildhälften sieht.

Abbildung 4.38 zeigt Vorhersagen (links) und Messungen (rechts) der inneren Reibung in halblogarithmischer Darstellung. Die Vorhersage berücksichtigt wieder eine

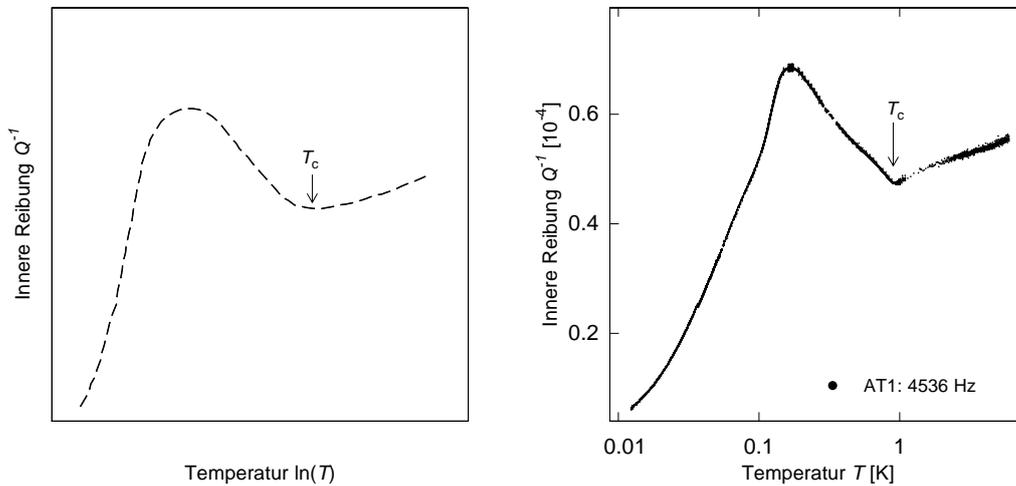


Abb. 4.38: Vorhersage der inneren Reibung unter Berücksichtigung einer renormierten Tunnelaufspaltung nach [Kag88] (links), sowie Messdaten der AT 1-Mode (rechts) in Abhängigkeit von der Temperatur in halblogarithmischer Auftragung. Sowohl die Vorhersage als auch die gemessene innere Reibung zeigen ein Minimum bei T_c .

renormierte Tunnelaufspaltung. Auch bei dieser Messgröße erkennt man eine große Ähnlichkeit zwischen Vorhersage und Messung. Besonders das Minimum um T_c ist in beiden Bildhälften zu erkennen, wohingegen das unveränderte STM in diesem Temperaturbereich ein Plateau in der inneren Reibung voraussagt. Das Minimum ergibt sich aus der Renormierung des Tunnelparameters, die als Konsequenz eine temperatur-, frequenz- und kopplungskonstantenabhängige minimale Tunnelaufspaltung $\tilde{\Delta}_{0,\min}(T, f, K)$ hat.

Eine exakte Implementierung der von Kagan und Prokof'ev vorgeschlagenen Renormierung in die Theorie des STMs zur Vorhersage der Temperaturabhängigkeit der elastischen Eigenschaften ist komplex. Ersetzt man in einer ersten groben Nähe-

nung dieser Erweiterung die veränderte minimale Tunnelaufspaltung $\tilde{\Delta}_{0,\min}$ mit einem vergrößerten festen Wert, zeigen sich bereits erhebliche Auswirkungen im Temperaturbereich um T_c .

Abbildung 4.39 zeigt Messergebnisse der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und inneren Reibung (rechts) der AT 1-Mode, sowie theoretische Berechnungen. Neben den bereits vorgestellten (blau) sind zusätzlich Kurven eingezeichnet, bei

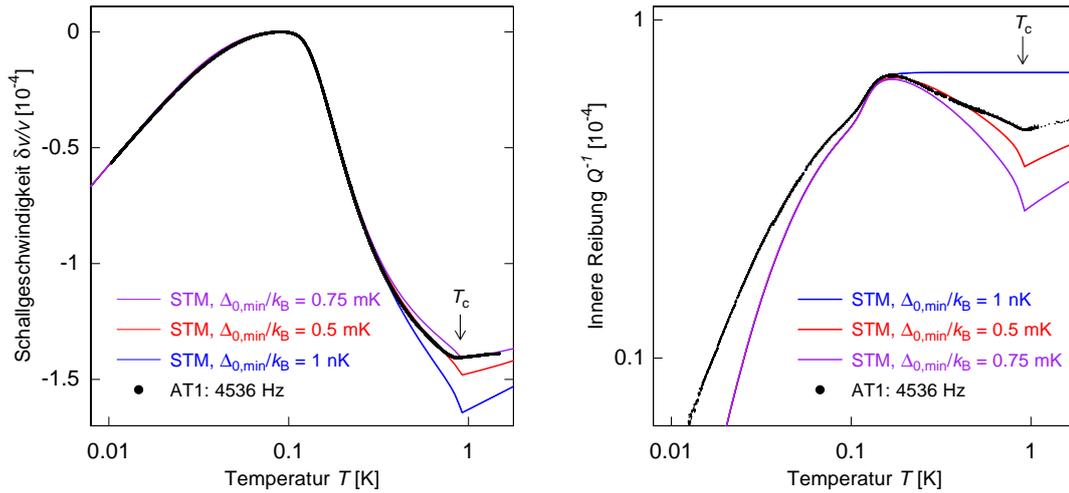


Abb. 4.39: Relative Schallgeschwindigkeitsänderung (links) und innere Reibung (rechts) der AT 1-Mode in Abhängigkeit von der Temperatur. Zusätzlich sind Vorhersagen des STMs für die jeweilige Größe eingezeichnet. Dabei wurde eine minimale Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}/k_B$ von 0,5 mK (rot) und 0,75 mK (violett) gewählt.

denen eine minimale Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}/k_B$ von 0,5 mK (rot) und 0,75 mK (violett) gewählt wurden. Bei beiden Messgrößen bewirkt diese Einschränkung der Verteilungsfunktion eine Verringerung der zusätzlichen Relaxation auf Grund von Quasiteilchen/Elektronen. Da diese am stärksten im normalleitenden Zustand vorhanden ist, führt eine Reduktion zu einer höheren Schallgeschwindigkeit im normalleitenden Zustand. Dies kann man in der linken Hälfte von Abbildung 4.39 anhand der roten Kurve sehen, die einen flacheren Verlauf im normalleitenden aufweist und die Messdaten im gesamten Temperaturbereich unterhalb von T_c hervorragend beschreibt. Mit einer noch größeren minimalen Tunnelaufspaltung von 0,75 mK die als Variante in violett dargestellt ist, ist die Schallgeschwindigkeit oberhalb T_c noch höher, sodass dort die Messdaten besser beschrieben werden. Unterhalb von T_c ist die Abweichung entsprechend größer.

Die durch die Einschränkung der Verteilungsfunktion hervorgerufene Verringerung der zusätzlichen Relaxation ist im normalleitenden Bereich am größten. Unterhalb von T_c verringert sie sich aber schnell mit sinkender Temperatur. Dies kann sehr gut in der rechten Bildhälfte von Abbildung 4.39 beobachtet werden, wo die in-

nere Reibung der AT 1-Mode, sowie Vorhersagen mit den soeben vorgestellten Parametern dargestellt sind. Sowohl die Messdaten als auch die Vorhersagen zeigen, dass die durch die veränderte Verteilungsfunktion verursachte reduzierte Relaxation unterhalb von T_c mit sinkender Temperatur wieder größer wird, sodass bei T_c ein Minimum entsteht. Dieses ist umso ausgeprägter, je stärker die Verteilungsfunktion eingeschränkt wird.

Die im letzten Absatz vorgestellten Vorhersagen sind nur eine Näherung der von Kagan und Prokof'ev vorgeschlagenen Erweiterung des STMs, weshalb eine vollständige Übereinstimmung zwischen Vorhersage und Messdaten nicht erwartet werden konnte. Allerdings zeigen die vorgestellten Messergebnisse, dass eine Interpretation dieser ohne jegliche Berücksichtigung eines Einflusses der Quasiteilchen und Leitungselektronen auf den Tunnelprozess über die von Black beschriebene Relaxation hinaus, nicht erfolgreich sein kann.

Die in diesem Kapitel dargestellten elastischen Eigenschaften, sowohl die Schallgeschwindigkeitsänderung als auch die innere Reibung von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ konnten dank der Weiterentwicklung der Messmethodik sehr präzise ermittelt werden. Unter Berücksichtigung des Einflusses von sowohl Leitungselektronen im normalleitenden, als auch von Quasiteilchen im supraleitenden Zustand des Glases, konnte eine gute Übereinstimmung der Messdaten mit Vorhersagen des Standardtunnelmodells in einem großen Temperaturbereich gefunden werden, was eine direkte Bestimmung der Elektron-Tunnelsystem-Kopplungskonstante zu $K = 0,45$ erlaubte. Unter der Annahme eines BCS-artigen Verhaltens, konnte der Einfluss der Elektronen und Quasiteilchen zur Relaxation abgeschätzt werden. Es zeigt sich, dass deren Beitrag zur Relaxation erst bei einem Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen kleiner 10^{-6} vernachlässigbar gering ist. Eine gute Übereinstimmung der Messdaten mit numerischen Berechnungen des um den Einfluss der Quasiteilchen und Elektronen erweiterten STMs konnte auch im Bereich der Sprungtemperatur T_c erreicht werden, wenn eine Änderung der Verteilungsfunktion der Tunnelparameter berücksichtigt wird, wie sie beispielsweise durch die Renormierung der Tunnelaufspaltung auf Grund der Wechselwirkung von Quasiteilchen und Elektronen mit Tunnelsystemen verursacht wird. Zukünftig sollen die im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelten Torsionsoszillatormessungen bei der Untersuchung nach dem Einfluss von Kernmomenten und inkohärentem Tunneln auf die Dynamik von Tunnelsystemen in Gläsern einen signifikanten Betrag leisten.

5. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmalig die elastischen Eigenschaften eines metallischen Glases im gesamten Temperaturbereich zwischen 10 mK und 300 K zusammenhängend untersucht. Mit Hilfe akustischer Messungen wurden die relative Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung von metallischem Glas am Beispiel von $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Ti}_{10}\text{Ni}_5$ bestimmt. Dazu wurde erstmalig ein Double-Paddle-Oszillator (DPO) vollständig aus massivem metallischen Glas hergestellt. Die damit erzielten Messergebnisse hoher Qualität erlauben eine qualitative und quantitative Analyse.

Die hohe Qualität der erzielten Messergebnisse wurde möglich durch die Weiterentwicklung einer Reihe von Messtechniken. Die Wahl der Probengeometrie eines Double-Paddle-Oszillators bietet den Vorteil eines reichhaltigen Modenspektrums. So sind die antisymmetrischen Torsionsmoden weitestgehend von mechanischen Störungen entkoppelt. Dies ist auch der Grund für eine minimale Energiedissipation durch den Probenhalter selbst. Der Probenhalter wurde modular erweiterbar gestaltet und ermöglicht so neben einer kapazitiven eine induktive Detektion der DPO-Schwingung. Zu diesem Zweck wurde eine supraleitende mikrostrukturierte Aufnehmerspule entwickelt, welche auf die Detektion der Bewegung von Torsionsmoden hin optimiert ist. Die Verbindung zwischen der Aufnehmerspule und der Einkoppelspule eines SQUIDs konnte mit Niob-Titan-Drähten realisiert werden. Dies erlaubt es, die verwendete induktive Detektionsmethode auch im einstelligen Kelvinbereich zu benutzen. Die Implementierung einer Messsoftware mit zwei PID-Reglern ermöglicht es, gleichzeitig die Schallgeschwindigkeitsänderung und innere Reibung kontinuierlich bei gleichbleibender Verzerrung zu messen. Dank dieser Weiterentwicklungen der akustischen Messtechnik konnte die relative Schallgeschwindigkeitsänderung und die innere Reibung erstmalig mit einer Genauigkeit gemessen werden, die es erlaubt eine auch quantitative Analyse der Messergebnisse vorzunehmen.

Im Temperaturbereich zwischen 1 und 300 K, welcher bei der Betrachtung der inneren Reibung in der Literatur oft mit „nearly constant loss“ beschrieben wird, konnten drei breite Maxima ermittelt werden. Das größte, welches bei der AT 2-Mode seinen maximalen Wert bei 272 K hat, kann auf die Verzerrungsfeld-induzierte kurzreichweitige Umlagerung von Wasserstoff innerhalb der Matrix des metallischen Glases zurückgeführt werden. Dieser Relaxationsmechanismus wird Snoek-Relaxation genannt [Sno41]. Ein weiteres breites Maximum der inneren Reibung findet sich für die AT 2-Mode im Temperaturbereich um 153 K. Die Ursache dieses weit unterhalb der Glasübergangstemperatur T_g von 683 K auftretenden Relaxationsbeitrags ist bis-

lang unbekannt. Nimmt man an, dass die Ursache der erhöhten inneren Reibung auf eine Relaxation zurückzuführen ist, die ihren Ursprung in einem thermisch aktivierten Prozess hat, so kann dessen Aktivierungsenergie zu $E_A = (0,36 \pm 0,09)$ eV bestimmt werden [Sch14]. Ein weiteres Maximum der inneren Reibung hat seinen Maximalwert bei 13 K. Dieses korrespondiert mit einem Zusatzbeitrag zur spezifischen Wärme im selben Temperaturbereich, welchen A. Reifenberger bei Wärmekapazitätsmessungen an Proben aus demselben Guss ermittelte [Rei]. Ein derartiger Zusatzbeitrag, sowohl bei dielektrischen, als auch metallischen Gläsern, wird üblicherweise unter dem Namen Boson-Peak diskutiert.

Die Bestimmung der Sprungtemperatur T_c von $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$, welche auch durch eine unabhängige Messung der Suszeptibilität des Probenmaterials erfolgte, ermöglicht eine genauere Analyse des Einflusses der Leitungselektronen und Quasiteilchen zur Relaxation. Relaxationsprozesse werden neben resonanten Prozessen vom Standardtunnelmodell vorhergesagt, um die Dynamik in Gläsern zu beschreiben, wenn bei sehr tiefen Temperaturen Phononen oder Leitungselektronen mit Tunnel-systemen wechselwirken. Die Relaxation über Phononen, welche unterhalb weniger Kelvin mit dem Ein-Phonon-Prozess beschrieben werden kann, läuft parallel zur Relaxation über Leitungselektronen ab. Unter der Annahme, dass diese Prozesse unabhängig sind, können die Relaxationsraten addiert werden. Mit Hilfe eines Vergleichs der Messergebnisse der Schallgeschwindigkeitsänderung und der inneren Reibung mit den Vorhersagen des Standardtunnelmodells konnte, unter der Annahme eines BCS-artigen Verhaltens, der Einfluss der Elektronen und Quasiteilchen zur Relaxation abgeschätzt werden. Es zeigt sich, dass deren Beitrag zur Relaxation erst bei einem Anteil thermisch aktivierter Quasiteilchen kleiner 10^{-6} vernachlässigbar gering ist. Der ermittelte Wert der Elektron-Tunnelsystem-Kopplungskonstante konnte unter Berücksichtigung dieser Annahmen auf $K = 0,45$ für die AT 1-Mode festgelegt werden.

Trotz der hervorragenden Übereinstimmung der Messdaten mit theoretischen Vorhersagen der relativen Schallgeschwindigkeitsänderung in einem weiten Temperaturbereich zeigen sich Diskrepanzen, welche sich mit dem Standardtunnelmodell in der ursprünglichen Form nicht vereinbaren lassen. Eine mögliche, diskutierte Erweiterung des Tunnelmodells nach Kagan und Prokof'ev, welche eine Renormierung der Tunnelaufspaltung Δ_0 auf Grund von Leitungselektronen berücksichtigt [Kag88], sagt neben einer temperatur- und frequenzabhängigen minimalen Tunnelaufspaltung $\tilde{\Delta}_{0,\min}(T, f, K)$ einen reduzierten resonanten Beitrag für Temperaturen oberhalb von T_c voraus. Die Einschränkung der Verteilungsfunktion durch Einführung einer erhöhten minimalen Tunnelaufspaltung $\Delta_{0,\min}$ als erste grobe Näherung dieser Erweiterung wurde im Rahmen dieser Arbeit diskutiert und resultiert in einer qualitativ guten Übereinstimmung mit den Messungen im Bereich um T_c .

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass Torsionsoszillatormessungen eine gute Möglichkeit bieten mehr über die Natur der Tunnelsysteme in amorphen Substanzen zu lernen. Mit dieser Arbeit wurden wichtige Fortschritte gemacht. Auf Grund inhärenter Vorteile dieser Messmethode ist diese prädestiniert bei der Beantwortung weiterer Fragestellungen, beispielsweise nach dem Einfluss von Kernmomenten oder inkohärentem Tunneln bei ultratiefen Temperaturen, einen signifikanten Betrag zu leisten.

Literaturverzeichnis

- [And72] P. W. Anderson, B. I. Halperin, und C. M. Varma, Anomalous low-temperature thermal properties of glasses and spin glasses, *Philos. Mag.*, **25**(1), 1–9, 1972.
- [Arn75] W. Arnold und S. Hunklinger, Experimental evidence for the direct interaction between two-level systems in glasses at very low temperatures, *Solid State Comm.*, **17**(7), 883–886, 1975.
- [Bak12] S. A. Bakai, A. S. Bulatov, V. S. Klochko, A. V. Korniets, und M. P. Fateev, On the low-temperature absorption of longitudinal ultrasound in $\text{Zr}_{52.5}\text{Ti}_5\text{Cu}_{17.9}\text{Ni}_{14.6}\text{Al}_{10}$ bulk metallic glass, *Low Temp. Phys.*, **38**(10), 948–951, 2012.
- [Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper, und J. R. Schrieffer, Theory of superconductivity, *Phys. Rev.*, **108**, 1175–1204, 1957.
- [Ber60] J. D. Bernal, Geometry of the structure of monatomic liquids, *Nature*, **185**(4706), 68–70, 1960.
- [Ber75] B. S. Berry und W. C. Pritchett, Vibrating reed internal friction apparatus for films and foils, *IBM J. Res. Dev.*, **19**(4), 334–343, 1975.
- [Ber78] B.S. Berry, W.C. Pritchett, und C.C. Tsuei, Discovery of an internal-friction peak in the metallic glass Nb_3Ge_1 , *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 410–413, 1978.
- [Bla78] J. L. Black und B. L. Gyorffy, Interaction of the conduction electrons with tunneling states in metallic glasses, *Phys. Rev. Lett.*, **41**(23), 1595–1598, 1978.
- [Bla79] J. L. Black und P. Fulde, Influence of the superconducting state upon the low-temperature properties of metallic glasses, *Phys. Rev. Lett.*, **43**(6), 453–456, 1979.
- [Bla81] J. L. Black, Low-energy excitations in metallic glasses, in H. J. Güntherodt und H. Beck (Ed.), *Glassy Metals 1*, volume 46 of *Top. Appl. Phys.*, 167–190, Springer-Verlag, Berlin, 1981.
- [Bra07] D. Braess, *Finite Elemente*, volume 4, Springer, Heidelberg, 2007.

- [Car70] G. S. Cargill, Dense random packing of hard spheres as a structural model for noncrystalline metallic solids, *J. Appl. Phys.*, **41**(5), 2248–2250, 1970.
- [Che69] H. S. Chen und D. Turnbull, Formation, stability and structure of Palladium-Silicon based alloy glasses, *Acta Metall.*, **17**(8), 1021–1031, 1969.
- [Che09] Y. Q. Cheng, E. Ma, und H. W. Sheng, Atomic level structure in multi-component bulk metallic glass, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 245501, 2009.
- [Cla91] J. Claßen, *Niederfrequente akustische Messungen an Quarzglas und an amorphem Palladium-Zirkonium*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 1991.
- [Cla04] J. Clarke und A. Braginski, *The SQUID Handbook: Fundamentals and technology of SQUIDs and SQUID systems*, volume 1, Wiley-VCH, 2004.
- [Coh59] M. H. Cohen und D. Turnbull, Molecular transport in liquids and glasses, *J. Chem. Phys.*, **31**(5), 1164–1169, 1959.
- [Coh61] M. H. Cohen und D. Turnbull, Composition requirements for glass formation in metallic and ionic systems, *Nature*, **189**(4759), 131–132, 1961.
- [Coo56] L. N. Cooper, Bound electron pairs in a degenerate fermi gas, *Phys. Rev.*, **104**, 1189–1190, 1956.
- [Deb12] P. Debye, Zur Theorie der spezifischen Wärme, *Ann. d. Physik*, **9**(39), 789, 1912.
- [Duw60] P. Duwez, R. H. Willens, und W. Klement, Continuous series of metastable solid solutions in silver-copper alloys, *J. Appl. Phys.*, **31**(6), 1136–1137, 1960.
- [Ens05] C. Enss und S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, volume 1, Springer, Heidelberg, 2005.
- [Esq86] P. Esquinazi, H. M. Ritter, H. Neckel, G. Weiss, und S. Hunklinger, Acoustic experiments on amorphous $P_{30}Zr_{70}$ and $Cu_{30}Zr_{70}$ in the superconducting and the normal state, *Z. Phys. B: Condens. Matter*, **64**(1), 81–93, 1986.
- [Esq92] P. Esquinazi, R. König, und F. Pobell, Acoustic properties of amorphous SiO_2 and $PdSiCu$, and of crystalline Ag , $NbTi$ and Ta at very low temperatures, *Z. Phys. B: Condens. Matter*, **87**(3), 305–321, 1992.
- [Esq98] P. Esquinazi, *Tunneling Systems in Amorphous and Crystalline Solids*, Springer, Heidelberg, 1998.

-
- [Fin70] J. L. Finney, Random packings and the structure of simple liquids. II. The molecular geometry of simple liquids, *P. Roy. Soc. Lond. A Mat.*, **319**(1539), 495–507, 1970.
- [Fra52] F. C. Frank, Supercooling of liquids, *P. Roy. Soc. Lond. A Mat.*, **215**(1120), 43–46, 1952.
- [Fre14] B. Frey, *Niederfrequente akustische Messungen des massiven metallischen Glases Au₄₉Ag_{5,5}Pd_{2,3}Cu_{26,9}Si_{16,3} im Temperaturbereich von 78 bis 300 Kelvin*, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg, 2014.
- [Gol78] B. Golding, J. E. Graebner, A. B. Kane, und J. L. Black, Relaxation of tunneling systems by conduction electrons in a metallic glass, *Phys. Rev. Lett.*, **41**(21), 1487–1491, 1978.
- [Hei02] M. Heitz, *Niederfrequente Messungen an abschreckend kondensierten Edelgasfilmen und strukturellen Gläsern*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2002.
- [Hes96] J. Hessinger, B. E. White Jr., und R. O. Pohl, Elastic properties of amorphous and crystalline ice films, *Planet. Space Sci.*, **44**(9), 937–944, 1996.
- [Hui09] X. Hui, H.Z. Fang, G.L. Chen, S.L. Shang, Y. Wang, J.Y. Qin, und Z.K. Liu, Atomic structure of Zr_{41.2}Ti_{13.8}Cu_{12.5}Ni₁₀Be_{22.5} bulk metallic glass alloy, *Acta Mater.*, **57**(2), 376–391, 2009.
- [Hun74] S. Hunklinger, Ultrasonics in amorphous materials, in *Ultrason. Symp. Proc.*, 493–501, IEEE, 1974.
- [Hun76] S. Hunklinger und W. Arnold, *Physical Acoustics*, volume 12, Academic, New York, 1976.
- [Hun77] S. Hunklinger, *Advances in solid state physics XVII*, Vieweg, Braunschweig, 1977.
- [Ino88] A. Inoue, K. Ohtera, K. Kita, und T. Masumoto, New amorphous Mg-Ce-Ni alloys with high strength and good ductility, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**(12A), 2248–2251, 1988.
- [Ino95] A. Inoue und T. Zhang, Fabrication of bulky Zr-based glassy alloys by suction casting into copper mold, *Mater. Trans., JIM*, **36**(9), 1184–1187, 1995.
- [Ino99] A. Inoue, *Bulk Amorphous Alloys - Practical Characteristics and Applications*, volume 6, Trans Tech Publications, Zürich, 1999.

- [Ino00] A. Inoue, Stabilization of metallic supercooled liquid and bulk amorphous alloys, *Acta Mater.*, **48**(1), 279–306, 2000.
- [Jäc72] J. Jäckle, On the ultrasonic attenuation in glasses at low temperatures, *Z. Phys. A: Hadrons Nucl.*, **257**(3), 212–223, 1972.
- [Jäc76] J. Jäckle, L. Piché, W. Arnold, und S. Hunklinger, Elastic effects of structural relaxation in glasses at low temperatures, *J. Non-Cryst. Solids*, **20**(3), 365–391, 1976.
- [Jäc86] J. Jäckle, Models of the glass transition, *Rep. Prog. Phys.*, **49**(2), 171–231, 1986.
- [Joh28] J.B. Johnson, Thermal agitation of electricity in conductors, *Phys. Rev.*, **32**, 97–109, 1928.
- [Joh86] W. L. Johnson, Thermodynamic and kinetic aspects of the crystal to glass transformation in metallic materials, *Prog. Mater Sci.*, **30**(2), 81–134, 1986.
- [Kag87] Yu. Kagan und N. V. Prokof'ev, Relaxation of two-level systems and sound absorption in metallic glasses, *JETP Lett.*, **45**(2), 91–95, 1987.
- [Kag88] Yu. Kagan und N. V. Prokof'ev, Acoustic properties of metallic and superconducting glasses, *Solid State Comm.*, **65**(11), 1385–1389, 1988.
- [Kle60] W. Klement, R. H. Willens, und P. Duwez, Non-crystalline structure in solidified Gold-Silicon alloys, *Nature*, **187**, 869–870, 1960.
- [Kle85] R. N. Kleiman, G. K. Kaminsky, J. D. Reppy, R. Pindak, und D. J. Bishop, Single-crystal silicon high-Q torsional oscillators, *Rev. Sci. Instrum.*, **56**(11), 2088–2091, 1985.
- [Kön02] R. König, I. Ushero-Marshak, M. A. Ramos, P. Esquinazi, J. Arcas-Guijarro, und A. Hernando-Mañeru, Temperature and intensity dependence of the acoustic properties of normal- and superconducting amorphous metals at low temperatures, *Physica B*, **316–317**(0), 509–512, 2002.
- [Kon76] J. Kondo, Localized atomic states in metals, *Physica B*, **84**(1), 40–49, 1976.
- [Kui84] H. W. Kui, A. L. Greer, und D. Turnbull, Formation of bulk metallic glass by fluxing, *Appl. Phys. Lett.*, **45**(6), 615–616, 1984.
- [Löf03] J. F. Löffler, Bulk metallic glasses, *Intermetallics*, **11**(6), 529–540, 2003.

-
- [Liu01] X. Liu, S. F. Morse, J. F. Vignola, D. M. Photiadis, A. Sarkissian, M. H. Marcus, und B. H. Houston, On the modes and loss mechanisms of a high Q mechanical oscillator, *Appl. Phys. Lett.*, **78**(10), 1346–1348, 2001.
- [Luc11] A. Luck, *Untersuchung dielektrischer Eigenschaften zweier Gläser bei sehr tiefen Temperaturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 2011.
- [Moh99] S.S. Mohan, M. del Mar Hershenson, S.P. Boyd, und T.H. Lee, Simple accurate expressions for planar spiral inductances, *IEEE J. Solid-State Circuits*, **34**(10), 1419–1424, 1999.
- [Net07] A. Netsch, *Suche nach einem neuartigen, auf wechselwirkenden atomaren Tunnelsystemen basierenden Wärmediffusionsprozess in Gläsern bei ultratiefen Temperaturen*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2007.
- [Nis97] N. Nishiyama und A. Inoue, Flux treated Pd-Cu-Ni-P amorphous alloy having low critical cooling rate, *Mater. Trans., JIM*, **38**(5), 464–472, 1997.
- [Nyq28] H. Nyquist, Thermal agitation of electric charge in conductors, *Phys. Rev.*, **32**, 110–113, 1928.
- [Phi72] W. A. Phillips, Tunneling states in amorphous solids, *J. Low Temp. Phys.*, **7**(3–4), 351–360, 1972.
- [Phi84] W. A. Phillips, *Amorphous Solids - Low Temperature Properties, Topics in Current Physics*, volume 9, Springer, Heidelberg, 1984.
- [Pie12] C. Pies, *maXs-200: Entwicklung und Charakterisierung eines Röntgendetektors basierend auf magnetischen Kalorimetern für die hochauflösende Spektroskopie hochgeladener Ionen*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2012.
- [Pob07] F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, volume 3, Springer, Heidelberg, 2007.
- [Ram00] M. A. Ramos, R. König, E. Gaganidze, und P. Esquinazi, Acoustic properties of amorphous metals at very low temperatures: Applicability of the tunneling model, *Phys. Rev. B*, **61**(2), 1059–1067, 2000.
- [Ray84] A. K. Raychaudhuri und S. Hunklinger, Low frequency elastic properties of glasses at low temperatures - implications on the tunneling model, *Phys. Rev. B*, **57**(2), 113–125, 1984.
- [Rei] A. Reifenberger, Dissertation, Universität Heidelberg, (in Vorbereitung).

- [Rei99] B. Reinker, M. Dopfer, M. Moske, und K. Samwer, Specific heat of $\text{Zr}_{65}\text{Al}_{7.5}\text{Cu}_{17.5}\text{Ni}_{10}$ around the glass transition., *Eur. Phys. J. B*, **7**(3), 359–364, 1999.
- [Rei00] H. Reichert, Observation of five-fold local symmetry in liquid lead, *Nature*, **408**(6814), 839–841, 2000.
- [Rot08] D. S. Rothfuß, *Wärmeleitfähigkeit von metallischen Gläsern bei sehr tiefen Temperaturen.*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg, 2008.
- [Rot13] D. S. Rothfuß, *Thermische Eigenschaften von supraleitenden massiven metallischen Gläsern bei ultratiefen Temperaturen*, Dissertation, Universität Heidelberg, 2013.
- [Rös04] P. Rösner, K. Samwer, und P. Lunkenheimer, Indications for an excess wing in metallic glasses from the mechanical loss modulus in $\text{Zr}_{65}\text{Al}_{7.5}\text{Cu}_{27.5}$, *Europhys. Lett.*, **68**(2), 226, 2004.
- [Sai01] J. Saida, M. Matsushita, und A. Inoue, Direct observation of icosahedral cluster in $\text{Zr}_{70}\text{Pd}_{30}$ binary glassy alloy, *Appl. Phys. Lett.*, **79**(3), 412–414, 2001.
- [Sch02] T. Schenk, D. Holland-Moritz, V. Simonet, R. Bellissent, D. M., und Herlach, Icosahedral short-range order in deeply undercooled metallic melts, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 075507, 2002.
- [Sch05] S. Schöttl, R. Rusby, H. Godfrin, M. Meschke, V. Goudon, S. Triqueneaux, A. Peruzzi, M.J. de Groot, R. Jochemsen, W. Bosch, Y. Hermier, L. Pitre, C. Rives, B. Fellmuth, und J. Engert, Evaluation of SRD1000 superconductive reference devices, *J. Low Temp. Phys.*, **138**(3-4), 941–946, 2005.
- [Sch14] M. Schrodin, *Niederfrequente mechanische Spektroskopie am massiven metallischen Glas $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}\text{Ni}_5$ im Temperaturbereich von 78 bis 300 Kelvin*, Bachelorarbeit, Universität Heidelberg, 2014.
- [Sco62] D. Scott, Radial distribution of the random close packing of equal spheres, *Nature*, **194**(4832), 596–597, 1962.
- [Sey94] R. J. Seyler, *Assignment of the Glass Transition*, ASTM International, 1994.
- [Sku54] E.J. Skudrzyk, *Die Grundlagen der Akustik*, volume 1, Springer, 1954.
- [Sno41] J.L. Snoek, Effect of small quantities of carbon and nitrogen on the elastic and plastic properties of iron, *Physica*, **8**(7), 711–733, 1941.

-
- [Spa00] F. Spaepen, Five-fold symmetry in liquids, *Nature*, **408**(6814), 781–782, 2000.
- [Ste76] R. B. Stephens, Intrinsic low-temperature thermal properties of glasses, *Phys. Rev. B*, **13**, 852–865, 1976.
- [Sto50] J.J. Stoker, *Nonlinear Vibrations in Mechanical and Electrical Systems*, volume 2, Interscience Publishers, 1950.
- [Tam07] S. Tamura, M. Fukuhara, und A. Inoue, Changes in mechanical properties of Zr-based bulk metallic glass under linear heating and cooling, *J. Appl. Phys.*, **101**(7), 073520, 2007.
- [Tel04] M. Telford, The case for bulk metallic glass, *Mat. Today*, **7**(3), 36–43, 2004.
- [Tur50] D. Turnbull und R. E. Cech, Microscopic observation of the solidification of small metal droplets, *J. Appl. Phys.*, **21**(8), 804–810, 1950.
- [Tur69] D. Turnbull, Under what conditions can a glass be formed?, *Contemp. Phys.*, **10**(5), 473–488, 1969.
- [vL81] H. v. Löhneysen, Low energy excitations in amorphous metals, *Phys. Rep.*, **79**(3), 161–212, 1981.
- [Whi95] B. E. White und R. O. Pohl, Internal friction of subnanometer α -SiO₂ films, *Phys. Rev. Lett.*, **75**(24), 4437–4439, 1995.
- [Wil71] G. Williams und D.C. Watts, Molecular motion in the glassy state. The effect of temperature and pressure on the dielectric β relaxation of polyvinyl chloride, *Trans. Faraday Soc.*, **67**, 1971–1979, 1971.
- [Wür02] A. Würger, A. Fleischmann, und C. Enss, Dephasing of atomic tunneling by nuclear quadrupoles, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 237601, 2002.
- [Yag04] T. Yagi, T. Imai, R. Tamura, und S. Takeuchi, Internal friction of hydrogen-doped metallic glasses of high glass forming ability, *Mater. Sci. Eng., A*, **370**(1–2), 264–267, 2004.
- [Yam84] K. Yamada, Diffusion of positive muon and orthogonality theorem, *Progr. Theoret. Phys.*, **72**(2), 195–201, 1984.
- [Yao06] W. M. Yao, Review of particle physics, *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.*, **33**(1), 2006.
- [Zac32] W. H. Zachariasen, The atomic arrangement in glass, *J. Am. Chem. Soc.*, **54**(10), 3841–3851, 1932.

[Zel71] R. C. Zeller und R. O. Pohl, Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids, *Phys. Rev. B*, **4**(6), 2029, 1971.

Danksagung

Zum Schluss möchte ich mich bei all jenen bedanken, die mich in die letzten Jahren begleitet und unterstützt haben und so maßgeblich an der Entstehung und dem Gelingen dieser Arbeit mitgewirkt haben Mein besonderer Dank gilt:

PROF. CHRISTIAN ENSS für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und dass er mir so ermöglicht hat an den interessanten Fragestellungen der Tieftemperaturphysik zu arbeiten.

ANDREAS FLEISCHMANN für seine vielen Ideen, Anregungen und Vorschläge. Darüber hinaus danke ich ihm für die kritische und sorgfältige Durchsicht dieser Arbeit.

ANDREAS REISER für die vielen konstruktiven Tipps und die Unterstützung bei allen Experimenten, sowie die Unterstützung auch außerhalb des Labors.

Meinen Bürokollegen ANNINA LUCK, DANIEL ROTHFUSS und ANDREAS REIFENBERGER für die ungezählten kleinen und größeren Hilfestellungen die das Zusammenarbeiten so viel angenehmer machen. Nicht zuletzt auch für das Korrekturlesen dieser Arbeit und die Mathematica-Skills.

Allen anderen aktuellen und ehemaligen MITGLIEDERN DER FORSCHUNGSGRUPPEN F3 UND F4. Danke für die schöne Zeit und dass ich so manches Mal auch bei Euren Experimenten mitwirken durfte.

GERNOT KASPER und MANFRED VON SCHICKFUSS für so manchen guten Tipp zur Elektronik und das ein oder andere Stück Apfelkuchen.

Der Technikcrew um die Herren EITEL, WOLF, WEIS, KIEDROWSKI, KATTINGER, SPIEGEL, AZEROTH und WEIDNER sowie allen Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt für die zur Verfügung gestellte Hardware und das technische Know-how, sodass aus Ideen Wirklichkeit wurde.

STEFFEN WELZ, CHRISTOPH SUERGERS und GEORG WEISS, den Nicht-KIPianern, die dieses Projekt ermöglicht haben.

SEBASTIAN NOEBEL, STEFFEN WETZEL, LEO PÖTTINGER, DANIEL ROTHFUSS, und MICHEL KINZER für die gemeinsame Zeit in Heidelberg.

Nicht zuletzt möchte ich meiner FAMILIE danken, für ihr Interesse an meiner Arbeit und die immerwährende Unterstützung während des gesamten Studiums.

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

Heidelberg, den 08.05.2015

.....

(Marius Hempel)